LE JOURNAL DE PHYSIQUE
ET
LE RADIUM

CONDITIONS D'UTILISATION DU CYCLOTRON INSTALLÉ AU COLLÈGE DE FRANCE

Par PIERRE SAVEL,
Sous-Directeur du Laboratoire de Chimie nucléaire au Collège de France.

Sommaire. — Le cyclotron construit au Collège de France a été jusqu'à ce jour utilisé uniquement pour l'accélération d'ions d'hydrogène lourd (deutérons) sous des tensions de l'ordre de 6 à 7 MeV. Ces deutérons arrivent, soit sur des cibles diverses que l'on veut irradier, soit sur des cibles de glucinium ou de lithium pour une production intense de neutrons.

Suivant la nature, la forme géométrique de la cible à irradier, le type de réaction nucléaire envisagé, il se présente plusieurs possibilités d'emploi du cyclotron. Dans chacun des cas il est intéressant de connaître, au moins approximativement, l'intensité de la source neutronique dont on dispose. Il nous a donc paru utile d'étudier successivement :

1° La répartition neutronique autour du cyclotron, principalement dans les secteurs libres de tout appareillage, et par conséquent utilisables pour la disposition des différentes cibles à irradier.

2° L'épaisseur optimum de paraffine à interposer entre les parois du cyclotron et la cible pour obtenir la plus grande intensité possible de neutrons lents. Ceci nous permettra de déterminer « l'équivalence » en radium du cyclotron.

3° La forme et la répartition du faisceau de deutérons dans la chambre de sortie.

I. — Utilisation du cyclotron.

Avant de préciser les possibilités du cyclotron, nous allons donner quelques indications succinctes sur les diverses conditions d'utilisation de cet appareil.

1° *Faisceau.* — *a.* Le faisceau de deutérons extrait des électrodes creuses d'accélération (*dees*) par le déflecteur, tombe directement sur la cible à irradier (réactions des types D — α, D — p, D — n). La cible peut se trouver, soit à l'intérieur de la chambre de sortie, soit à l'extérieur si cette dernière est fermée par une mince feuille d'aluminium permettant la sortie des ions à l'air libre. Dans les deux cas les dimensions de la cible ne doivent pas dépasser 90 × 25 mm.

b. Le faisceau de deutérons tombe sur une plaque de glucinium ou de lithium fixée à l'intérieur de la chambre de sortie; les neutrons ainsi produits servent à irradier des cibles de formes les plus diverses réparties autour de cette chambre (réactions du type n — α, n — p, etc.).

2° *Sondes.* — On peut placer sur le parcours des deutérons, entre les deux électrodes accélératrices, un ou deux porte-cibles de faibles dimensions que l'on appelle sondes.

a. Sur ces sondes, énergiquement refroidies, on fixe, soit la cible à irradier (réactions D — α, etc.), diamètre maximum 17 mm, soit une pastille de Be. Dans ce dernier cas, les neutrons créés sont utilisés pour irradier les produits placés à l'extérieur de la chambre d'accélération.

b. La sonde portant la pastille de Be est creuse; à l'intérieur de celle-ci, et immédiatement derrière le glucinium, on peut glisser une cible de faibles dimensions que l'on veut irradier avec des neutrons rapides (diamètre maximum, 17 mm).

3° Même en l'absence de sonde portant une pastille de glucinium ou de lithium dans la chambre de sortie, il y a toujours production de neutrons du fait qu'une partie du faisceau de neutrons frappe une pastille de Be fixée sur le talon du déflecteur. Ces neutrons sont alors utilisés à l'extérieur de la chambre d'accélération.

Contrôle du fonctionnement du cyclotron. — Plusieurs méthodes sont utilisées séparément ou simultanément pour contrôler la marche du cyclotron.

1° *Chambre d'ionisation.* — Une chambre d'ionisation remplie d'air, et de grandes dimensions (50 l), placée à demeure à une distance de 2 m du cyclotron, est reliée à un électromètre Curie-Debierne situé sur la table de commande. Le courant d'ionisation provoqué par l'effet des neutrons est mesuré par la méthode de déviation constante. Par suite d'un défaut de saturation, les déviations ne sont pas proportionnelles au courant d'ionisation dès que celui-ci devient important; cette méthode permet seulement de vérifier et de maintenir la résonance, mais n'indique que d'une façon grossière l'intensité du rayonnement neutronique.

2° *Cylindre de Faraday.* — Le faisceau dévié par le déflecteur vient frapper la cible située au fond d'un cylindre de Faraday; la mesure du courant d'ions se fait alors directement sur un microampèremètre placé sur la table de commande.

3° *Méthode calorimétrique.* — La cible précédente et les sondes placées sur le trajet des deutérons entre les « dees » sont refroidies par un courant d'eau constant et dont le débit est connu exactement; l'élévation de température de cette eau permet de calculer la puissance perdue par le faisceau d'ions arrivant sur ces cibles. Connaissant l'énergie des deutérons exprimée en électrons-volts, on peut en déduire le courant d'ions en μA. On constate que le faisceau arrivant sur le cylindre de Faraday n'est qu'une fraction $\left(\sim\frac{1}{10}\right)$ du courant d'ions que peuvent recevoir les sondes.

4° *Electroscope à aiguille.* — Un électroscope à aiguille de petites dimensions, rigoureusement étanche, est placé à demeure à une distance voisine de 15 m du cyclotron. La décharge se lit facilement grâce à l'aiguille se déplaçant devant un cadran gradué. On a pu ainsi établir la relation entre la puissance reçue par une sonde et la vitesse de décharge de cet électroscope.

Répartition neutronique autour du cyclotron. — Lorsque le cyclotron est utilisé pour la production de neutrons lents, plusieurs secteurs libres de tout appareillage peuvent recevoir les produits à irradier; la figure 1 montre l'emplacement de ces secteurs (1).

Comme détecteur de neutrons lents nous avons employé le vanadium de période 3,75 min. Une émulsion de V^2O^5 dans le xylol renfermant un peu de baume du Canada, était versée dans quatre cuvettes de plomb de 48 mm de diamètre (le plomb a été choisi comme support à cause de sa très faible activité provoquée par les neutrons). Après évaporation on obtient une couche compacte de V^2O^5 à peu près uniforme, de masse superficielle voisine de 100 mg/cm². Ces détecteurs étaient ensuite

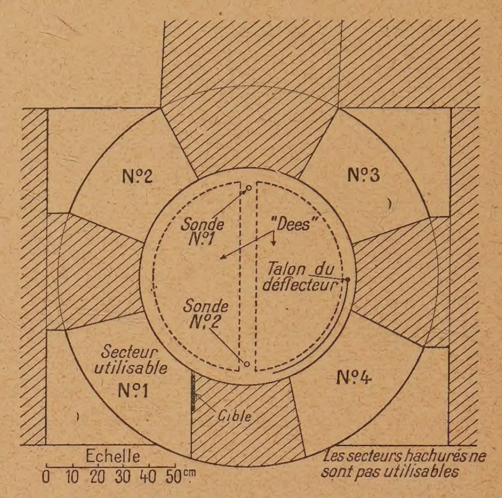


Fig. 1.

irradiés séparément et dans les mêmes conditions, par les neutrons émis par une source de radium de 500 mg mélangé à de la poudre de glucinium. L'activité était mesurée avec précision à l'aide d'une chambre d'ionisation fermée par une feuille d'aluminium de 5/1 000e d'épaisseur et reliée à une lampe électromètre.

TABLEAU I.

Mode d'utilisation.	Intensité neutronique relative dans chacun des secteurs. N° 1.	N° 2.	N° 3.	N° 4.
Pas de sonde. Talon du déflecteur seul...	0,46	0,35	1,0	1,0
Sonde n° 1...............	0,19	0,44	1,0	0,19
Sonde n° 2...............	1,0	0,23	0,17	0,61
Sonde n° 1 enfoncée de 3 cm à l'intérieur des « dees »............... Sonde n° 2 enfoncée de 4 cm...............	1,0	0,31	0,54	0,66
Sonde n° 1 à 3 cm........ » n° 2 à 3,6 cm.......	0,57	0,56	1,0	0,42
Faisceau dévié 0,3 μA	1,0			0,50
Cible Be ou Li 1 »	1,0			0,22
» » 4 »	1,0			0,08

(1) Pour permettre des expériences comparatives, ces secteurs ont été subdivisés.

Ainsi étalonnés, ces détecteurs, enfermés à l'intérieur de quatre blocs de paraffine identiques, étaient alors placés sur un des secteurs utilisables dans une position soigneusement repérée. On faisait ensuite fonctionner le cyclotron pendant quelques minutes, puis l'activité respective des détecteurs était mesurée avec le même appareillage que précédemment. Suivant les conditions d'emploi du cyclotron (pas de sonde, une ou deux sondes portant du Be, faisceau dévié), on voit, ainsi qu'il fallait s'y attendre, que l'activité relative des quatre détecteurs varie dans de larges limites.

Le tableau I résume ces résultats.

II. Rendement ou « équivalence » du cyclotron.

Dès la mise en service d'un nouvel appareil producteur d'ions capables de provoquer des transmutations, on a cherché à le caractériser par son rendement ou son « équivalence » en radium. On entend par ces expressions la quantité de radium mélangé à de la poudre de glucinium dont il faudrait disposer pour obtenir le même nombre de neutrons que celui qui est effectivement émis par cet appareil.

L'évaluation de ce rendement peut se faire suivant plusieurs méthodes, mais devant la diversité des résultats obtenus par différents auteurs il nous a semblé utile de préciser ce point particulier.

La meilleure méthode pour déterminer le nombre total de neutrons émis par une source est certainement celle préconisée par Amaldi et Fermi, consistant à rendre thermiques tous ces neutrons, puis à intégrer les mesures de densité neutronique à différentes distances de la source.

Cette méthode, facilement applicable lorsqu'il s'agit de déterminer le nombre de neutrons émis par une ampoule de (Ra + Be) ou (Rn + Be) devient souvent impossible à réaliser lorsque l'on a affaire à des appareils producteurs de neutrons. Avec les tubes d'accélération d'ions verticaux ou horizontaux, on peut quelquefois entourer la cible émettrice de neutrons d'un volume d'eau ou de paraffine assez grand nécessaire au ralentissement des neutrons, mais dans le cas du cyclotron on doit renoncer à cette possibilité.

Un autre moyen utilisé pour évaluer le rendement consiste à comparer l'activité produite dans un détecteur de neutrons par un faisceau d'ions accélérés tombant sur une cible appropriée (B — Li ou D), et d'autre part, par une source naturelle (Rn Be) mise à la place de la cible précédente; toutes les autres conditions restant par ailleurs identiques dans les deux expériences.

On peut enfin mesurer l'ionisation produite par les protons projetés par les neutrons issus de ce nouvel appareil, ou compter ces protons à l'aide de compteurs proportionnels ou de chambres à détente de Wilson et en déduire le nombre de neutrons incidents.

Ces deux dernières méthodes ont été souvent utilisées, mais malheureusement les résultats publiés par divers auteurs manquent de précision quant aux conditions géométriques des expériences, ce qui rend les comparaisons difficiles et illusoires. On peut noter en effet des variations allant d'un facteur 2 à 2000 pour un même débit d'ions et une même tension d'accélération ! [2].

La méthode d'Amaldi et Fermi n'étant pas toujours applicable, on pourrait cependant estimer l'efficacité d'un appareil producteur de neutrons d'un type quelconque, d'une manière simple, rapide et d'une précision suffisante, en comparant les activités d'un détecteur approprié, obtenues avec cet appareil, d'une part, et, d'autre part, en *utilisant au maximum les possibilités d'une source naturelle de neutrons* (Ra + Be *ou* Rn + Be) *d'intensité connue.* C'est en utilisant cette dernière méthode que nous avons obtenu les résultats concernant le cyclotron du Collège de France.

1. Activité maximum d'un détecteur de neutrons obtenue avec une source naturelle de neutrons. — 1° *Neutrons lents.* — Nous avons employé une source de neutrons constituée par un sel de radium contenant 500 mg de radium élément, mélangé à de la poudre de glucinium. Cette source, fabriquée en Belgique, se présente sous la forme d'un cylindre métallique de 15 mm de diamètre et de 20 mm de largeur.

Utilisant un volume d'eau de 250 l et une série de détecteurs de neutrons lents en dysprosium, nous avons, par la méthode d'Amaldi et Fermi, comparé cette source à deux ampoules de (Rn + Be (215 et 95 mc) fabriquées de la manière habituelle à l'Institut du Radium de Paris. Dans les deux cas nous l'avons trouvée équivalente à 540 mc de Rn + Be.

Cette source (Ra + Be) était ensuite placée dans une cavité creusée au centre d'un bloc de paraffine de 30 cm de diamètre et de 30 cm de hauteur; le détecteur de neutrons lents, composé d'un disque de vanadium précédemment décrit, était placé à l'intérieur du bloc de paraffine à des distances variables de la source (Ra + Be). L'activité était mesurée dans une chambre d'ionisation ordinaire reliée à une lampe électromètre. L'intensité maximum a été trouvée lorsque la source (Ra + Be) était placée horizontalement et le détecteur directement au-dessus d'elle. Dans ces conditions le courant d'ionisation à l'origine du temps et pour une irradiation à saturation a été trouvé égal à 0,000490 u.e.s. *C'est donc pour le détecteur choisi* $^{52}_{23}V$ *le maximum*

[2] E. Amaldi, L. R. Hafstad et M. A. Tuve, *Phys. Rev.*, 1937, **51**, p. 896.

d'activité que nous pouvons obtenir avec notre source de Ra + Be.

2° *Neutrons rapides.* — On sait que, suivant leur énergie, la section efficace de capture des neutrons rapides varie dans de très larges limites. La répartition énergétique des neutrons provenant d'une source de Ra + Be et du cyclotron (D + Be) ou (D + Li) étant très différente, l'équivalence du cyclotron en neutrons rapides varie donc suivant le détecteur envisagé. A titre simplement indicatif, nous avons utilisé un seul détecteur, le cuivre, avec la réaction $n - 2n$ donnant ${}^{64}_{29}C$ de période 12,8 h.

Une feuille de cuivre rouge pur de 55 × 30 mm enfermée dans une feuille de Cd était enroulée autour de la source de Ra + Be; après irradiation jusqu'à saturation, l'activité était mesurée au compteur Geiger-Müller; à l'origine du temps celle-ci était *de* 32 *coups/min.* (Le mouvement propre étant de 5,4 coups/min.)

2. Activité maximum d'un détecteur de neutrons obtenue avec le cyclotron. — 1° *Neutrons lents.* — *a. Conditions de l'expérience.* — Suivant

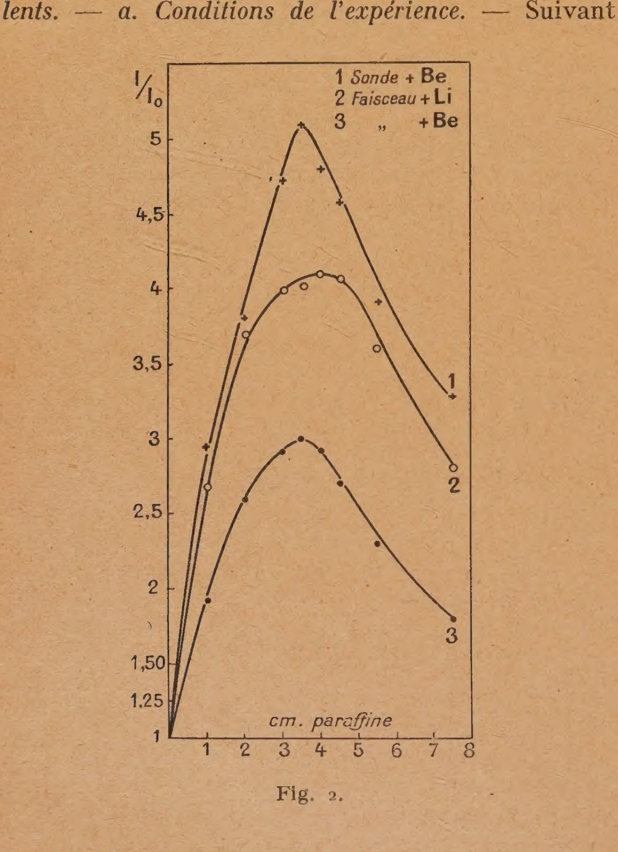


Fig. 2.

que les neutrons proviennent de la « sonde » portant une pastille de Be ou de la cible irradiée par le faisceau dévié, leur distribution de vitesse dans le voisinage du détecteur, c'est-à-dire à une distance de leur origine de 30 cm dans le premier cas et de 2 à 3 cm dans le second, doit être différente; une épaisseur différente de paraffine paraît être nécessaire pour les ramener à la vitesse d'agitation thermique. Nous avons donc recherché dans les deux cas quelle était l'épaisseur de paraffine à interposer entre le détecteur et les parois extérieures du cyclotron pour obtenir la plus forte activité possible de ce détecteur. Ce dernier, constitué par le disque de vanadium, était placé verticalement à hauteur du faisceau d'ions et était entouré d'un édifice construit avec des briques de paraffine. On faisait alors varier seulement la couche de paraffine entre le détecteur et les parois du cyclotron. Un détecteur témoin placé à une certaine distance du cyclotron permettait de vérifier le débit de neutrons au cours de chaque irradiation. La figure 2 indique les résultats trouvés.

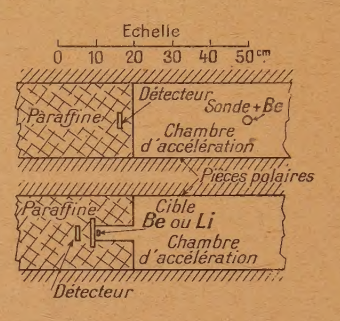


Fig. 3 et 4.

En ordonnées on a porté le rapport des activités avec et sans paraffine $\frac{I}{I_0}$ et en abscisses l'épaisseur de celle-ci. On voit que quelle que soit l'origine des neutrons (« sonde » ou cible Be) l'épaisseur optimum de paraffine est la même et voisine de 3,5 cm; avec une cible Li, les neutrons produits étant plus rapides, l'activité maximum est obtenue avec un écran de 4 cm.

Le facteur d'amplification qui est de 5 dans le cas de la sonde de Be, passe à 3 avec la cible Be et à 4,1 avec la cible Li, seules ces deux dernières expériences peuvent être comparées, car le dispositif géométrique est identique. Dans le premier cas il n'est pas possible d'entourer la source de neutrons avec une substance hydrogénée quelconque, tandis que les cibles de Be ou Li irradiées par le faisceau sont placées au fond d'un cylindre de Faraday que l'on peut noyer dans la paraffine.

En définitive, quel que soit le mode d'utilisation du cyclotron, il faudra toujours placer entre les parois de ce dernier et le produit à irradier par neutrons lents un écran de 3 à 4 cm de paraffine, pour obtenir l'activité maximum.

b. « Équivalence » avec sonde. — La sonde Be n° 1 étant à 3,5 cm à l'intérieur des « dees », on a pu vérifier que l'intensité neutronique était proportionnelle à l'intensité ionique reçue par la sonde depuis 30 watts jusqu'à 300 watts. Dans les meilleures

conditions, c'est-à-dire le détecteur placé dans le secteur n° 3 et avec un écran de 3,5 cm de paraffine, le courant d'ionisation à l'origine du temps a été trouvé égal à 0,009555 u. e. s. par watt, ce qui correspond à un équivalent de 9,75 g *de* Ra + Be *par watt.* Il faudrait donc disposer d'une source de Ra + Be contenant 2900 g de Ra pour produire la même activité que la sonde Be absorbant une puissance ionique de 300 W. Il sera permis d'augmenter encore cette puissance lorsque l'on aura pu améliorer le refroidissement de la sonde.

c. Équivalence avec cibles. — On a vérifié que l'activité du détecteur placé dans les meilleures conditions derrière la chambre de Faraday était proportionnelle au courant d'ions reçu par la cible depuis 1 μA jusqu'à 12 μA (maximum obtenu actuellement).

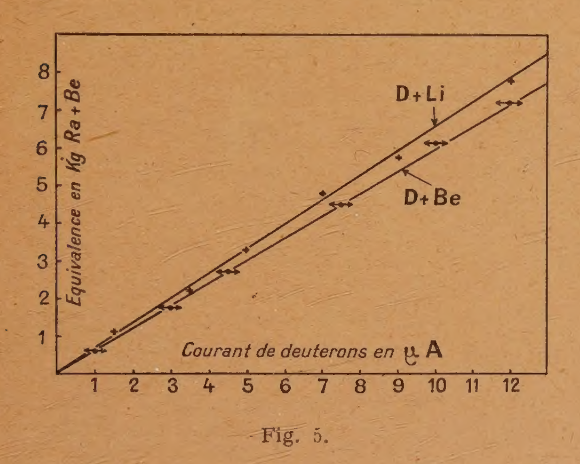


Fig. 5.

Avec la cible de Be, on a trouvé un équivalent de 600 g de (Ra + Be), alors qu'avec la cible de Li cet équivalent monte à 650 g. C'est donc au maximum d'une source de 7800 g de RaBe qu'il faudrait disposer pour obtenir la même activité du détecteur de neutrons lents.

2° *Neutrons rapides. — a. Équivalence avec sonde.* — La même feuille de cuivre précédemment utilisée avec la source (Ra + Be), entourée de bore, était placée directement contre les parois du cyclotron dans le secteur n° 3 et à hauteur de la sonde. Après irradiation l'activité était mesurée avec le même compteur et dans les mêmes conditions que pour l'étalonnage. A l'origine du temps et pour une irradiation à saturation on obtient 406 coups/min/w, ce qui correspond pour une puissance de 300 w reçue par la sonde à un équivalent de 1900 g de RaBe.

b. Équivalence avec sonde creuse. — La même feuille de cuivre est placée au fond de la sonde creuse portant une pastille de Be. On trouve dans ces conditions un équivalent de 35,2 g de RaBe par watt correspondant pour une puissance de 300 W à un équivalent de 10 560 g de RaBe.

c. Équivalence avec cibles de Be *et* Li. — Le même détecteur, toujours entouré de bore, est fixé à l'extérieur du cyclotron immédiatement derrière la cible irradiée par le faisceau de deutons.

L'équivalent trouvé a été dans le cas de la cible de Be de 410 g/μA alors qu'avec la cible de Li il devenait 1 925 g/μA. On peut donc obtenir une équivalence de 4 920 g de RaBe dans un cas et de 23 100 g de RaBe dans l'autre, lorsque le courant d'ions arrivant sur la cible atteint 12 μA.

Il reste bien entendu que tous ces résultats concernant les neutrons rapides sont valables uniquement pour la réaction ^{63}Cu n — $2n$ ^{64}Cu; avec d'autres détecteurs et pour d'autres réactions on doit s'attendre à des résultats différents.

Résultats obtenus par l'emploi de la deuxième méthode. — A titre de comparaison nous avons déterminé l' « équivalence » du cyclotron suivant la deuxième méthode indiquée plus haut et très souvent employée par divers auteurs.

a. Sonde. — La source naturelle de RaBe a été fixée à l'intérieur du cyclotron à la place de la sonde n° 1; le détecteur resté dans la même position que précédemment dans le secteur n° 3 ne présentant pas une activité mesurable par la méthode d'ionisation, nous avons dû utiliser un compteur Geiger-Müller. Le rapport entre l'activité maximum obtenue avec notre source de RaBe et celle que l'on obtient dans ces conditions était de $\frac{I_{max}}{I} = 40 \pm 4$.

Afin d'augmenter la précision de cette expérience, nous l'avons répétée avec un détecteur de neutrons lents en dysprosium. Il est alors très facile de mesurer les activités par la méthode d'ionisation, et dans ces conditions le rapport $\frac{I_{max}}{I}$ a été trouvé égal à 39,6. En supposant que la distribution neutronique autour de la sonde portant une pastille de Be et de la source de RaBe est peu différente (une vérification rapide montre qu'il en est bien ainsi), on obtiendrait par ce procédé une « équivalence » de 2900 × 39,6 = 114 840 g de RaBe.

b. Cible Be *et* Li. — La source RaBe est fixée cette fois dans la chambre de Faraday au milieu de la cible de Be ou de Li. (On doit laisser ces deux cibles épaisses en place, car il est nécessaire de ne pas négliger l'absorption, dans les couches profondes, des neutrons produits en surface.) Le détecteur est placé comme auparavant dans les meilleures conditions possibles à l'extérieur du cyclotron.

Le rapport $\frac{I_{max}}{I}$ devient 2,0 dans le cas de la cible de Be et 1,80 pour la cible de Li. L' « équivalence » devrait donc être doublée suivant cette méthode.

c. Sonde creuse. — A l'extrémité de la sonde creuse et sur la pastille de Be, on a fixé la source RaBe; la feuille de cuivre était placée au fond de la sonde comme dans l'expérience analogue. Dans ces conditions $\frac{I_{\mathrm{m\,x}}}{I} = 5{,}5$ et l'équivalent serait de $10\,650 \times 5{,}5 = 58\,080$ g de Ra Be.

Le tableau II résume tous ces résultats.

TABLEAU II.

Mode d'utilisation du cyclotron.	Équivalence (en g Ra + Be).	Équivalence maximum (en g Ra + Be) obtenue suivant :	
		Notre méthode.	2e méthode.
Neutrons lents.			
Sonde n° 1 + Be (secteur 3)	9,75/W	2900	114800
Cible + Be	600 /μA	7200	14400
» + Li	650 /μA	7800	14040
Neutrons rapides $^{65}_{29}$Cu.n-$2n$.$^{64}_{29}$Cu.			
Sonde n° 1 + Be	6,35/W	1900	-
» creuse + Be	35,2 /W	10560	58080
Cible + Be	410 /μA	4920	-
» + Li	1925 /μA	23100	-

On voit, d'après ces quelques exemples, qu'il est nécessaire et indispensable de bien préciser les conditions qui ont présidé à l'établissement de cette « équivalence » si l'on veut présenter cette donnée comme une caractéristique de l'appareil.

Forme du faisceau et répartition de l'intensité des deutérons. — Dans certaines expériences : cibles de faibles dimensions par exemple, il peut être très important de connaître avec précision la forme et la répartition de l'intensité du faisceau de deutérons afin d'utiliser celui-ci dans les meilleurs conditions possibles. Dans ce but, nous avons fixé sur la pièce porte-cible une feuille de cuivre de 90 mm de longueur, 28 mm de hauteur et de 2/10e de millimètre d'épaisseur; après irradiation par le faisceau, cette feuille a été découpée en 15 tranches égales de 6 × 28 mm et pour chacune d'elles on a mesuré son activité. Cette expérience nous fournit la forme du spectre dans le sens latéral; un deuxième essai, dans lequel la feuille de cuivre est découpée

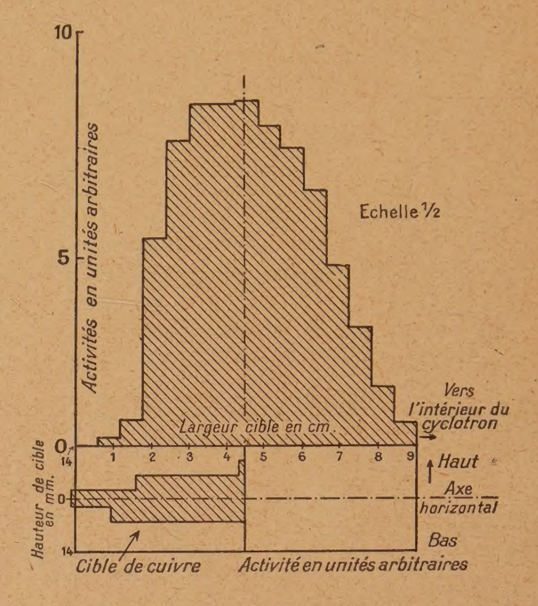


Fig. 6.

en 7 tranches égales de 4 × 90 mm, nous donne la forme du spectre dans le sens vertical. Les résultats indiqués sur la figure 6 montrent qu'une cible de 12 mm de hauteur sur 60 mm de largeur reçoit environ 90 pour 100 de l'intensite totale du faisceau.

Conclusions. — Cette étude, destinée aux utilisateurs éventuels du cyclotron du Collège de France, fournit un certain nombre de données essentiellement pratiques sur les possibilités actuelles de cet appareil.

Grâce à ces données qui permettent de déterminer à l'avance les formes géométriques des différents produits à irradier et l'ordre de grandeur des activités que l'on peut espérer, il est possible de prévoir les expériences réalisables avec chances de succès et d'éliminer celles qui auraient pu être tentées inutilement en l'absence de ces informations (3).

(3) En 1945, le courant de deutérons a atteint 17 μA, les « équivalences » maxima du tableau II doivent donc être majorées de 40 pour 100.

Manuscrit reçu le 26 mars 1945.

SPECTRES D'ABSORPTION INFRAROUGES ET MODES DE VIBRATION

I. Cétones aliphatiques.

Par Jean LECOMTE.

Laboratoire des Recherches physiques à la Sorbonne.

Sommaire. — En utilisant les fréquences obtenues pour l'acétone par d'autres auteurs, on donne pour cette substance, une interprétation du spectre moléculaire plus complète que celles qui avaient été proposées antérieurement. Passant ensuite à l'étude d'une vingtaine de cétones aliphatiques, dont le spectre infrarouge a été mesuré pour la première fois entre 1750 et 500 cm^{-1} environ par l'auteur, on montre comment les maxima d'absorption observés peuvent se rattacher aux modes de vibration des molécules. Cette synthèse conduit à mettre en évidence certaines fréquences caractéristiques de la fonction cétonique et à trouver le « poids spectroscopique équivalent » du groupement CO-R, où R représente une chaîne aliphatique, ramifiée ou non ramifiée.

Introduction. — Nous nous proposons, dans ce travail, de donner une vue d'ensemble sur les spectres d'absorption infrarouges des cétones aliphatiques qui font l'objet du présent article, puis nous passerons aux cétones aromatiques contenant un ou plusieurs noyaux phényliques et aux cétones naphtaléniques, et enfin à quelques cétones cycliques (cyclanones et benzocyclanones). Nous donnerons également, en quelque sorte hors série, les spectres de quelques autres cétones (à fonction éthylénique, etc.).

A propos de chacune de ces catégories de cétones, nous pourrons ainsi :

1° Apporter une contribution de mesures personnelles sur l'absorption infrarouge des cétones qui, pour la presque totalité, n'avaient pas encore été étudiées dans notre domaine spectral;

2° Comparer les positions de nos bandes infrarouges avec celles des raies Raman, données par d'autres auteurs;

3° Essayer de fournir une interprétation de nos résultats.

En ce qui concerne ce dernier point, il est intéressant de rattacher les modes de vibration des cétones — suivant une méthode qui a déjà été utilisée avec succès dans de nombreux cas par nous-même et par divers auteurs — à ceux d'autres composés, ce qui permet souvent d'obtenir une justification des attributions que nous proposons. On peut considérer, comme nous le ferons dans un autre travail [1], les composés de la forme R—CO—X, où X représente un constituant COH, NH_2, SH, Cl, Br, etc. On voit que, lorsque X s'identifie avec CH_3 ou, d'une manière plus générale, avec un radical aliphatique ou aromatique, on obtient une cétone. Il est loisible aussi de considérer une cétone écrite suivant la formule R—CO—R′ et d'essayer de la rattacher aux spectres des composés R—X ou R′—X (X représentant les mêmes substituants que ci-dessus), ce qui revient à considérer comme ponctuels les groupements (CO—R′) ou (CO—R).

Rappel des travaux antérieurs. — Les cétones aliphatiques, dont nous nous occuperons dans cette première partie, n'ont fait l'objet jusqu'à présent que d'un petit nombre de déterminations isolées dans l'infrarouge situé au delà de 5,8 μ environ (nombres d'onde inférieurs à 1 700 cm^{-1} environ). Après l'acétone, étudiée par Coblentz [2], l'acétone et la méthyl-éthyl-cétone, mentionnées dans notre thèse [3], nous avions donné, sous forme de tableau, dans le *Traité de Chimie organique* de Grignard [4], les spectres d'un certain nombre d'autres cétones aliphatiques (méthyl-propyl-, méthyl-isopropyl-, dibutyl-, méthyl-isobutyl-, méthyl-hexyl- et hexaméthyl-cétone). Une dispersion plus grande, dans un autre de nos travaux, avait permis une meilleure résolution de la région de 1250 à 1 750 cm^{-1} (8 à 5,71 μ environ) [5]. Pour l'état de vapeur, nous trouvons les recherches de Titeica [6] sur l'acétone, la diéthyl- et la méthyl-éthyl-cétone, ainsi que celles de Price [7] sur l'acétone, ces dernières s'étendant jusqu'à 500 cm^{-1} (20 μ).

Par contre, les spectres Raman d'un assez grand nombre de cétones aliphatiques sont bien connus, à la suite d'un travail d'ensemble de Kohlrausch et Pongratz [8] qui se complète, pour les éthyl-alkyl-cétones, par les déterminations de Milone [9]. Plus récemment, nous trouvons aussi quelques termes dans un travail de Mlle Biquard [10].

Kohlrausch et ses collaborateurs sont revenus à diverses reprises sur l'identification des modes de vibration avec des fréquences observées, en

particulier dans deux articles, l'un relativement ancien [11], et l'autre beaucoup plus récent [12] : nous ferons des emprunts à ces publications en essayant de compléter ces interprétations.

Technique expérimentale. — Nous avons étudié les cétones avec trois spectromètres enregistreurs décrits dans nos autres publications, munis d'un prisme de fluorine, de sel gemme ou de sylvine qui permettent de couvrir respectivement les intervalles spectraux : 1800-1250, 1250-700 et 700-525 cm^{-1} environ et d'obtenir à peu près la même précision (quelques cm^{-1}) dans la détermination des positions des maxima d'absorption.

La technique expérimentale ne diffère en rien de celle de nos recherches précédentes. Les cétones liquides s'étudient en couches de 0,01 à 0,05 mm. Pour les termes solides à la température ordinaire, nous avons recouru à une couche solide d'épaisseur analogue, obtenue par fusion entre deux lamelles de sel gemme ou de sylvine. Enfin, la dissolution dans le sulfure de carbone a conduit aussi à des résultats satisfaisants.

Étude particulière du spectre de l'acétone. — Nous n'avons pas repris les déterminations spectrales, et nous nous contenterons de donner une synthèse des résultats antérieurs, avec une interprétation plus complète que celle des autres auteurs. Nous insisterons principalement sur la présentation nouvelle de ces résultats : ceux-ci, d'ailleurs, permettront d'obtenir plus rapidement une analyse des spectres des autres cétones.

Rappelons les nombres donnés pour la position des bandes d'absorption infrarouges à l'état liquide.

763 (f)	790 (F)	884 (f)	918 (F)	1030 (f)	cm^{-1}
1098 (F)	1204 (F)	1338 (F)	1444 (F)		»

D'autre part, d'après les dernières mesures de Kahovec et Kohlrausch [12] les raies Raman sont voisines de

	390 (m)	489 (f)	527 (aF)	cm^{-1}
ρ......	0,87	-	0,70	
	787 (F)	903 (f)	1068 (aF)	»
ρ......	0,20	-	0,64	
	1225 (F)	1346 (f)	1429 (F)	»
ρ......	0,88	0,23	0,90	

(Les facteurs de dépolarisation ρ sont extraits des travaux de J. T. Edsall et E. B. Wilson Jr [13].)

La présence de raies dépolarisées indique l'existence d'au moins un plan de symétrie. Nous devons donc admettre que les atomes de carbone et d'oxygène se trouvent dans un plan P. Celui-ci contient, en outre, l'un des atomes d'hydrogène H′ de chacun des groupements méthyle, les deux autres atomes d'hydrogène H″ et H‴ étant répartis symétriquement à ce plan, suivant la figure 1. Il existe un deuxième plan de symétrie π, perpendiculaire au précédent, et contenant la liaison C = O. La symétrie de la molécule est alors C_{2v} (un axe de symétrie d'ordre 2, contenu dans un plan).

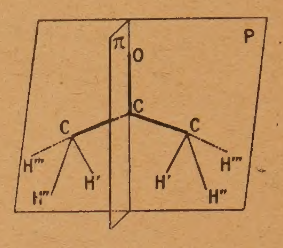


Fig. 1.

1° Si nous considérons un modèle réduit, dans lequel les masses CH_3 sont admises comme ponctuelles, nous aboutissons au type bien connu à quatre masses en Y, possédant six vibrations propres (*fig.* 2), toutes actives dans la diffusion et dans

Fig. 2.

l'absorption. L'identification avec les fréquences observées se présente, après les recherches récentes d'autres auteurs, comme la suivante :

ω_6.	ω_5.	ω_3.	ω_1.	ω_4.	ω_2.	
390	489	528	787-790	1204-1225	1705	cm^{-1}

La dépolarisation des raies Raman est en accord avec les stipulations théoriques. Pendant assez longtemps, on avait cru que ω_4 correspondait à des fréquences de l'ordre de 1068-1098 cm^{-1}. L'indication de la dépolarisation de la raie 1225 cm^{-1} a levé les doutes.

Fig. 3.

2° Pour tenir compte de la présence des atomes d'hydrogène, suivant la méthode indiquée dans l'introduction, nous prendrons comme point de comparaison les dérivés CH_3—X (X = NH_2, OH, CH_3, ..., Cl, Br, I) (modes de vibration dans la figure 3), ce qui revient à écrire l'acétone, en première approximation, CH_3—(CO—CH_3), les deux derniers

groupements étant supposés former une masse unique. Mais, dans ce cas, l'axe ternaire du groupement CH_3 ne constitue pas un axe de symétrie de la molécule, toutes les dégénérescences des vibrations de CH_3 sont levées, et nous aboutissons non pas à 6, mais à 9 vibrations distinctes, ainsi réparties :

Vibrations « internes » de CH_3	Trois vibrations de valence vers 3000 cm^{-1}, deux polarisées (ν_1 et ν_2) et une dépolarisée (ν_3) Trois vibrations de déformation vers 1300-1450 cm^{-1}, deux polarisées (δ_2 et δ_3) et une dépolarisée (δ_1)
Vibrations « externes » de CH_3	Deux vibrations provenant de ce que la vibration δ_{45} n'est plus dégénérée Une vibration entre CH_3 et le substituant ($CO-CH_3$) (ν_4)

La vibration du type ν_4 a déjà été identifiée avec ω_1 (787-790 cm^{-1}); c'est un mouvement entre les deux parties de la molécule considérées provisoirement comme des masses uniques [$CH_3-(CO-CH_3)$]. L'examen de cette vibration nous permet, parmi les dérivés CH_3-X, dont nous avons donné par ailleurs un tableau [14], de classer l'acétone entre le nitrile et le chlorure, ce qui donne une idée du poids spectroscopique équivalent de $CO-CH_3$. On constate également que le maximum d'absorption de 1098 cm^{-1} se place sensiblement dans la suite des bandes des autres dérivés CH_3-X qui correspond à δ_{45}. En Raman, il n'y a qu'une raie à 1069 cm^{-1} ($\rho = 0,64$), alors que l'on s'attend à deux raies, l'une polarisée et l'autre dépolarisée.

La région de 1300 à 1450 cm^{-1} rattache aux autres composés CH_3-X les deux fréquences qui ont été mesurées, d'une part au moyen de l'effet Raman, d'autre part dans l'absorption [5]. Nous reviendrons dans quelques lignes sur cette question.

Nous laisserons de côté la région de 3000 cm^{-1}, qui sort de notre domaine actuel.

Cette manière de procéder indique immédiatement, dans le spectre de l'acétone, les fréquences propres au groupement $CO-CH_3$, car elles échappent à la

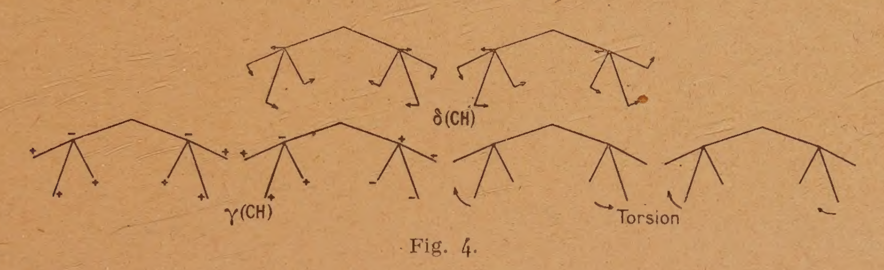


Fig. 4.

classification précédente. Elles confirment, en particulier, l'attribution de la fréquence 1204-1225 cm^{-1} à ce radical, car elle ne se rattache à aucune suite du modèle CH_3-X.

3° Prenant enfin le modèle moléculaire complet de l'acétone, avec ses dix masses vibrantes, les 24 vibrations propres, toutes distinctes, peuvent se classer de la manière suivante :

Six vibrations se rattachant au modèle réduit (déjà examinées dans le paragraphe 1);

Douze vibrations provenant des groupements CH_3 (six de valence et six de déformation);

Six représentant le mouvement des groupements CH_3 par rapport au reste de la molécule.

Dans le précédent paragraphe, nous venons de montrer que les vibrations internes de chaque groupement CH_3 sont au nombre de six (trois de valence et trois de déformation), puisque les dégénérescences sont levées par suite de la disparition de l'axe ternaire de CH_3 dans la molécule d'acétone. Lorsque l'on considère l'ensemble des deux groupements CH_3, ceux-ci peuvent vibrer en phase ou en opposition de phase, ce qui double le nombre des raies à prévoir pour chacun d'eux qui sont indiquées précédemment. Elles doivent d'ailleurs posséder des fréquences assez voisines, car on ne trouve que deux vibrations de déformation au lieu de six dans la région 1300-1450 cm^{-1} et quatre vibrations de valence au lieu de six vers 3000 cm^{-1}.

Les six vibrations auxquelles prend part toute la molécule, ont été assez peu étudiées jusqu'à présent. Nous les avons dessinées très schématiquement dans la figure 4. On peut se les représenter de la manière suivante, ce qui aidera les identifications :

— Deux vibrations de déformation planes δ(CH), dans lesquelles les groupements CH_3 exécutent soit une rotation, soit une antirotation. Ce sont des vibrations du type δ_{45}, qui ont été envisagées précédemment, et auxquelles correspondent probablement la bande infrarouge de 1098 cm^{-1} et la raie Raman de 1069 cm^{-1}.

— Un mouvement d'oscillation ou de pivotement γ(CH), les trois atomes d'hydrogène montant ou descendant vis-à-vis de l'atome de carbone auquel ils sont reliés, et qui exécute un mouvement dans le sens opposé. Nous devons prévoir deux vibrations distinctes, car les deux groupements CH_3 peuvent vibrer en phase ou en opposition de phase. Nous

pensons que la forte bande infrarouge à 918 cm^{-1} et la bande plus faible à 884 cm^{-1}, ainsi que la raie Raman faible à 903 cm^{-1} correspondent à ce genre de vibration. Dans d'autres recherches sur des composés possédant une « double liaison », nous avions attiré l'attention sur le résultat remarquable que la position de cette bande ne dépendait pas du nombre d'atomes de carbone contenus dans la molécule, et nous avions interprété également cette bande comme une vibration gauche γ(CH) [(15)].

— Un mouvement gauche de torsion des radicaux CH_3 donnant aussi deux vibrations distinctes pour la même raison que précédemment. Nous ne les identifions pas sûrement avec les fréquences observées. Pourtant nous pensons que la bande infrarouge faible de 1030 cm^{-1} pourrait représenter l'un de ces mouvements de torsion, car elle se retrouve aussi dans le spectre de composés CH_3—CO—X, que nous étudions dans une autre publication [1].

Spectres infrarouges des cétones aliphatiques : bandes d'absorption caractéristiques de la fonction cétonique. — Nous avons représenté dans les figures 5 et 6, le tableau de nos résultats, auxquels nous avons joint le spectre Raman des mêmes composés. Nous rappelons que les positions sont données en cm^{-1}, et que les hauteurs des traits se présentent à peu près comme proportionnelles à l'intensité des raies. D'après ce que nous disions précédemment, la plupart de ces cétones n'avaient pas été examinées avant nous dans notre région spectrale. (Pour certaines d'entre-elles, seule le domaine 700-1300 cm^{-1} environ a été étudié.) Les traits qui rejoignent, d'une cétone à une autre, les positions, figurées pour les maxima d'absorption ou les raies Ram n, nt pour but de guider le lecteur beaucoup plus que de représenter une correspondance exacte. Ainsi que nous l'indiquons à diverses reprises, lor que le nombre des atomes de carbone de la cétone étudiée augmente, il devient rapidement impossible de procéder à des attributions rigoureuses des modes de vibration aux fréquences observées, en raison de leur multiplication apide.

a. En écrivant la formule générale des cétones R—CO—R', où R et R' représentent deux radicaux aliphatiques, nous retrouvons un modèle à quatre masses, semblable à celui de l'acétone. Nous allons voir qu'il existe un certain nombre de vibrations de ce dernier corps, qui se trouvent assez peu influencées par les modifications dans la structure et le nombre des atomes de carbone de R ou R'. Dès lors, si en toute rigueur, l'ensemble de la molécule participe à chaque vibration, on peut, dans un certain nombre d'entre elles, faire abstraction des mouvements internes de R et de R'. Les bandes correspondantes compteront parmi celles qui caractériseront la fonction cétonique.

Le très fort maximum d'absorption vers 1 715-1 730 cm^{-1}, auquel s'associe d'ailleurs une raie Raman bien marquée et polarisée, ainsi que tous les auteurs l'ont montré depuis longtemps, représente la vibration C=O, analogue à ω_2, et reste pratiquement sans changement en parcourant la série des cétones aliphatiques. — Kohlrausch et Köppl avaient remarqué [8] la constance des vibrations, près de 510 et de 590 cm^{-1}, mais ils n'indiquaient pas, d'une manière certaine, les vibrations correspondantes. D'après les identifications du spectre de l'acétone données précédemment, nous pouvons les regarder comme rappelant respectivement ω_3 et ω_5, compte tenu naturellement des radicaux R et R', au lieu du groupement CH_3. La fréquence 510 cm^{-1} se trouve pratiquement en dehors de notre domaine spectral, mais nos mesures indiquent que, vers 590-595 cm^{-1}, existe une bande d'absorption plus ou moins marquée, dont la position ne dépend pratiquement pas de R et de R'.

Dans la région de 1170 cm^{-1} se place une zone d'opacité, qui ne se modifie que peu lorsque le nombre des atomes de carbone de la molécule varie. Nous pensons qu'il s'agit d'une vibration semblable à ω_4.

Sous toutes réserves, la vibration ω_6 de l'acétone se retrouverait dans les raies Raman vers 400-420 cm^{-1}, c'est-à-dire dans une région que nous étudierons ultérieurement avec un nouveau spectromètre.

b. Il existe, comme pour l'acétone, un certain nombre de bandes que l'on peut attribuer aux vibrations dans lesquelles les atomes d'hydrogène jouent un rôle essentiel, mais qui ne semblent pas se modifier systématiquement lorsque l'on parcourt la série des cétones.

Ce sont d'abord les bandes bien connues vers 1350 et 1450 cm^{-1}, caractéristiques des vibrations planes de déformation de CH_3 ou CH_2.

En écrivant, suivant la simplification grossière CH_3—Y, la formule d'une cétone, on peut s'attendre à trouver une vibration rappelant le mouvement δ_{45} du groupement CH_3, signalé pour l'acétone, qui se place ici aux environs de 1 120 cm^{-1}, cette position semblant dépendre peu du reste Y de la molécule.

De même, dans la région de 880 à 900 cm^{-1} s'observe une suite de bandes peu variables avec R et R'. Nous pensons qu'il s'agit ici également d'une vibration gauche γ(CH). On peut remarquer, en passant, que, dans le spectre de la méthyl-allyl-cétone, suivant ce que nous avons indiqué dans un précédent travail [15], la chaîne allyle donne aussi lieu à des vibrations gauches du même type γ(CH), qui se placent vers 910-920 cm^{-1}, parce que la « double liaison » se trouve en bout de chaîne. Cette dernière vibration semble l'emporter sur la vibration gauche des autres cétones, en tous cas, elle empêche de la voir.

On trouve parfois aussi, vers 1 030 cm^{-1}, une

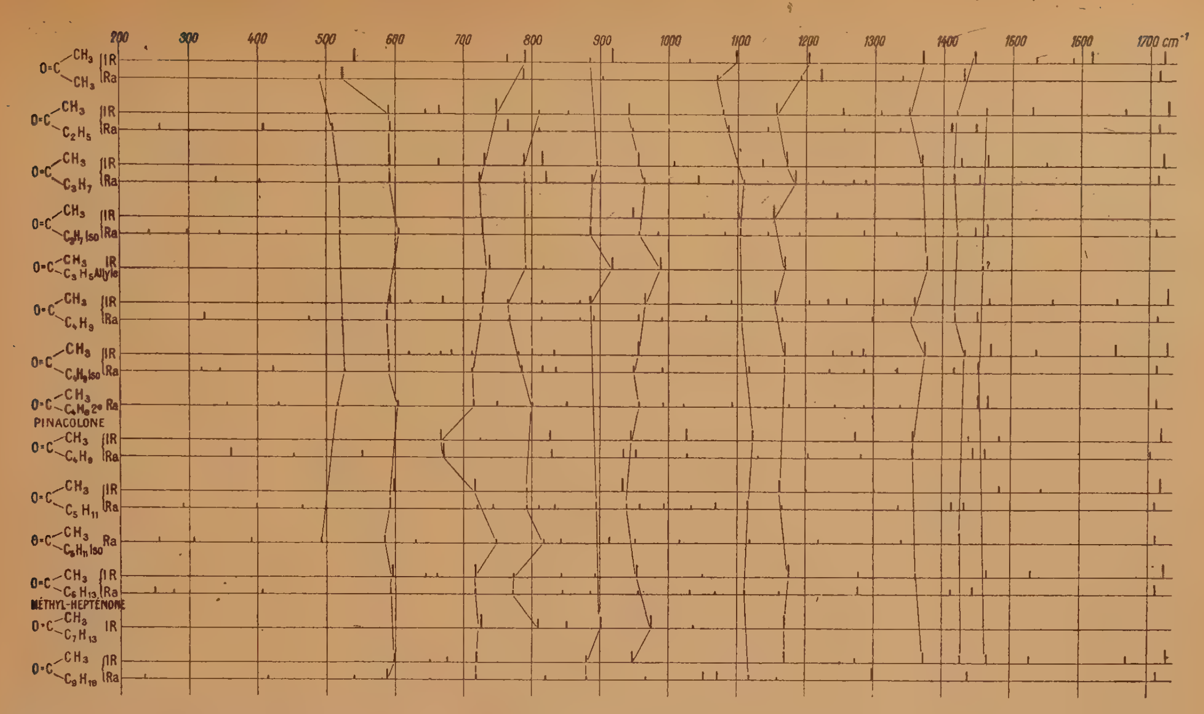


Fig. 5. — Positions et intensités des bandes infrarouges et des raies Raman de cétones aliphatiques (R—CO—CH_3).

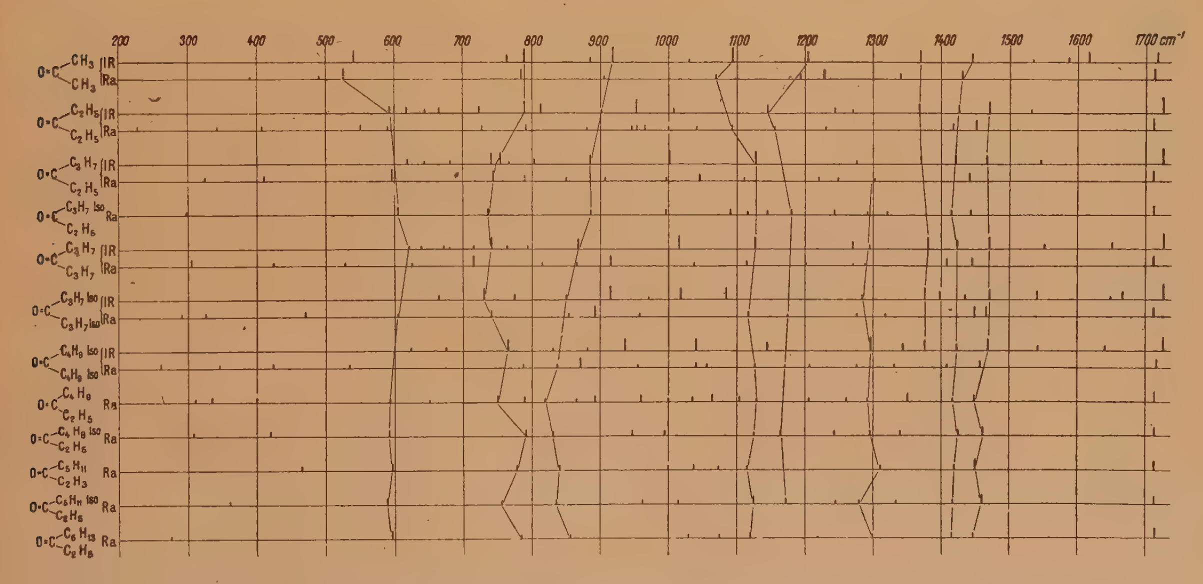


Fig. 6. — Positions et intensités des bandes infrarouges et des raies Raman de cétones aliphatiques saturées.

bande peu influencée par le substituant R ou R′ qui, dès lors, semble représenter une vibration analogue à celle de l'acétone qui a été examinée plus haut.

Spectres d'absorption des cétones aliphatiques : bandes d'absorption caractéristiques des chaînes carbonées. — Les suites de bandes que nous venons de passer en revue possédaient des fréquences peu différentes de celles de l'acétone, ce qui permettait de les rattacher plus facilement aux modes de vibration de cette substance. Maintenant, nous allons considérer les maxima d'absorption qui proviennent de la chaîne carbonée. Dès que celle-ci s'allonge, le nombre des vibrations que l'on peut prévoir augmente si rapidement qu'il ne peut être question de les identifier tous avec des bandes observées.

Pour les cétones homologues, il est intéressant de rechercher ce que devient la vibration ω_1 de l'acétone. Choisissons d'abord les cas des *méthyl-cétones* CH_3—CO—R. Pour des chaînes normales R, on constate un déplacement régulier de la bande correspondante, vers de plus faibles fréquences, à mesure que le nombre des atomes de carbone croît. Partant de 790 cm^{-1} pour l'acétone, cette suite arrive à 717 cm^{-1} pour la méthyl-nonyl-cétone. Lorsque R comprend 5 atomes de carbone, la bande se place près de 717 cm^{-1}, l'allongement ultérieur de la chaîne ne produit donc presque aucun effet. Avec des chaînes ramifiées, la bande se trouve à des fréquences, soit plus grandes, soit plus petites, que celles que l'on peut atteindre avec une chaîne R sans ramification, possédant le même nombre d'atomes de carbone. Un exemple du premier cas se présente avec le couple méthyl-butyl (n)-cétone et méthyl-butyl-tertiaire-cétone. Et un exemple du deuxième cas avec l'ensemble : méthyl-amyl (n)-cétone et méthyl-isoamyl-cétone. Nous en donnerons une explication dans quelques lignes.

Pour les cétones de formule générale R—CO—R′, et des chaînes normales R et R′, la vibration correspondant à ω_1 se déplace aussi vers 717 cm^{-1} à mesure que l'on monte dans la série homologie. Relativement à une méthyl-cétone possédant le même nombre d'atomes de carbone, le nombre d'onde sera plus faible, parce que la chaîne la plus longue R ou R′ restera nécessairement plus courte que celle (R″) de la cétone R″—CO—CH_3. (Exemple : éthyl-propyl- et méthyl-butyl-cétone.) Comme corollaire, les spectres d'absorption infrarouges de deux cétones isomères, différant par la position du groupement C=O, se distingueront entre eux, au moins pour des chaînes R ou R′ qui n'excèdent pas 5 ou 6 atomes de carbone. On regardera d'abord la position de la bande qui correspond à une vibration du type ω_1. D'après ce que nous avons dit, on obtiendra ainsi une première idée du « poids spectroscopique » des radicaux R ou R′. S'il s'agit de chaînes ramifiées R ou R′, quoique les exemples restent peu nombreux, il semble que les positions des bandes se trouvent à des fréquences plus grandes que celles des termes normaux correspondant (di-propyl- et di-isopropyl-cétone, dibutyl- et diisobutyl-cétone).

L'interprétation des spectres des composés R—CO—R′ rencontre d'ailleurs des difficultés :

1° Parce que, d'une cétone à une autre, les spectres connus conduisent à une variation simultanée de R et de R′, alors que, pour obtenir des régularités interprétables, il faudrait pouvoir laisser par exemple R′ fixe et faire varier R, ainsi que nous venons de le faire pour les méthyl-cétones;

2° Parce que nous n'avons eu à notre disposition que des cétones avec des chaînes R ou R′, d'au plus 4 atomes de carbone, de sorte que, pour les termes supérieurs, nous devions recourir aux spectres Raman de Milone [9].

La meilleure méthode, pour obtenir une identification des maxima propres aux chaînes carbonées R et R′, consiste à considérer l'une ou l'autre des parties (COR) ou (COR′) comme ponctuelle, et à comparer le spectre de la cétone respectivement à ceux des composés R—X ou R′—X (X représentant des groupements tels que NH_2, OH, CH_3, CN, Cl, Br I). Dans ces tableaux que nous avons souvent utilisés, les positions des bandes se déplacent assez régulièrement lorsque la masse de X varie. D'après les fréquences des maxima des cétones, il devient possible de classer leurs spectres parmi ceux des substituants X précédemment indiqués. Cette manière de procéder conduit ainsi à la détermination du « poids spectroscopique » des groupements COR ou COR′. On trouve qu'ils se placent généralement, pour la série aliphatique que nous considérons, dans l'ordre suivant : carbure, nitrile, cétone, mercaptan, chlorure, etc. En voici quelques exemples :

La méthyl-éthyl-cétone représentée comme un modèle angulaire à trois masses :

$$(CH_3)—(CH_2)—\left(C\begin{smallmatrix}\nearrow O\\ \searrow CH_3\end{smallmatrix}\right),$$

possède ainsi trois vibrations propres (*fig.* 7). La première ν_1, symétrique, de nombre d'onde 748 cm^{-1}, se confond avec le type ω_1 déjà examiné; la deuxième, antisymétrique ν_3, se place vers 941 cm^{-1} et la vibration de déformation ν_2 correspond à une fréquence basse (peut-être à la raie Raman vers 260 cm^{-1}, donnée par Mlle Biquard [10]) (¹).

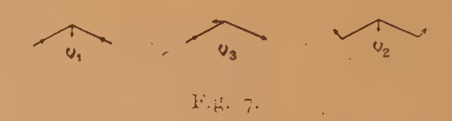


Fig. 7.

La méthyl-isopropyl-cétone se place entre le nitrile et le chlorure :

C_3H_7—CN (Ra) (cm^{-1}).....	753	?	967	1106
C_3H_7—CO—CH_3 (IR).......	724	884	957	1106
C_3H_7—Cl (IR)............	612	884	930	1051

La pinacolone $(CH_3)_3$≡C—CO—CH_3 conduit au classement :

$(CH_3)_3$≡C—CH_3 (Ra) (cm^{-1})....	732	920	–
Pinacolone (IR)..................	667	817	1123
$(CH_3)_3$≡C—Cl (IR)...........	570	807	1136

Dans chaque cas, la fréquence la plus basse peut être considérée, soit comme provenant d'une vibration

(¹) Le rapprochement avec les composés C_2H_5—X permet d'attribuer une vibration analogue à ω_6 à la raie Raman 408 cm^{-1}, et non à 260 cm^{-1}.

de la chaîne carbonée à laquelle se trouve attaché le groupement cétonique, soit comme une vibration analogue au mode dénommé ω_1 pour l'acétone. La considération des vibrations propres de la chaîne carbonée fournit ainsi l'explication des variations en position de ω_1, qui semblaient un peu désordonnées.

En raison de la multiplication très rapide du nombre des vibrations distinctes que l'on arrive à prévoir, dès que la chaîne carbonée s'allonge, il devient impossible de procéder à une analyse complète du spectre, comme celles que nous venons de donner. Néanmoins, une inspection même rapide de la figure 5 indique, en effet, en plus des maxima attribuables à ω_1, des régularités spectrales remarquables entre 700 et 1100 cm^{-1}, domaine des vibrations de la chaîne carbonée. Ainsi l'accroissement du nombre des atomes de carbone laisse cependant presque constante une bande vers 940-955 cm^{-1}.

Entre 780 et 850 cm^{-1} se trouvent deux suites de bandes, dont l'attribution semble beaucoup plus malaisée. Devons-nous y voir des vibrations symétriques (ou antisymétriques) de la chaîne carbonée R, ou bien faut-il les considérer comme des vibrations gauches dans lesquelles les atomes d'hydrogène jouent un rôle de premier plan ? La question ne semble pas encore entièrement résoluble. Il faut seulement remarquer que, pour la méthyl-éthylcétone, toutes les vibrations de valence de la chaîne ont été identifiées, la bande unique vers 810 cm^{-1} doit nécessairement représenter une vibration gauche. Rappelons que, dans des recherches antérieures sur les nitrates d'alcoyle [16], nous avons adopté cette interprétation, et que, dans une récente communication [17], nous pensons qu'il en est de même pour une bande des dérivés halogénés de l'éthane, située dans cette région. Aussi, sans pouvoir préciser le mode de vibration, pensons-nous qu'au moins l'une des suites considérées doit représenter un mouvement gauche.

Il reste malheureusement un domaine considérable à explorer : celui des fréquences inférieures à 500 cm^{-1}. Les raies Raman y apparaissent peu nombreuses et disposées d'une manière arbitraire. Elles correspondent vraisemblablement, pour la plupart, aux vibrations de déformation de la chaîne carbonée R, planes $\delta(C—C)$ ou gauches $\gamma(C—C)$. Ce problème pourra s'aborder, au moins pour la région 380-500 cm^{-1}, avec notre nouveau spectromètre à prisme de bromure de potassium, qui commence à donner de bons résultats.

Manuscrit reçu le 24 mars 1945.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] J. Lecomte, *Cahiers de Physique* (sous presse).
[2] W. W. Coblentz, *Investigations of infrared spectra* [*Publication Carnegie Inst.*, n° **35**, Washington (D. C.), 1905].
[3] J. Lecomte, *Thèse*, Paris, 1924.
[4] J. Lecomte, *Traité de Chimie organique* (Grignard, et Baud), **2**, p. 143-293; Paris, Masson, 1936.
[5] J. Lecomte, *Comptes rendus*, 1925, **180**, p. 1481-1482.
[6] R. Titeica, *Thèse*, Paris, 1933; *Ann. de Phys.*, 1934, **1**, p. 583-621.
[7] R. Price, *J. Chem. Phys.*, 1941, **9**, p. 725-726.
[8] K. W. F. Kohlrausch et Köppl, *Z. phys. Chem.*, B, 1934, **24**, p. 370-388.
[9] M. Milone, *Gaz. Chem. Ital.*, 1934, **64**, p. 876-882.
[10] Mlle D. Biquard, *Bull. Soc. Chim. France*, 1940, **7**, p. 894-904.
[12] L. Kahovec et K. W. F. Kohlrausch, *Z. phys. Chem.*, B, 1940, **46**, p. 165-180.
[11] K. W. F. Kohlrausch et A. Pongratz, *Z. phys. Chem.*, B, 1934, **27**, p. 176-195.
[13] J. T. Edsall et E. B. Wilson Jr, *J. Chem. Phys.*, 1938, **6**, p. 124-127.
[14] Cl. Duval, J. Lecomte et Mme F. Douvillé, *Ann. de Phys.*, 1942, **17**, p. 5-71.
[15] M. Tuot et J. Lecomte, *Bull. Soc. Chim.*, séances, 1943, n° **8**; 1943, **10**, p. 524-542.
[16] J. Lecomte et J. P. Mathieu, *J. Chim. Phys.*, 1942, **39**, p. 57-72.
[17] J. Lecomte, *Comptes rendus*, 1944, **218**, p. 45.

SUR LA PERMÉABILITÉ DES COUCHES FILTRANTES. PERMÉABILIMÈTRE DE PRÉCISION

Par L.-A. SACKMANN,

Maître de Conférences à la Faculté des Sciences de Marseille,

et L. HUGUES,

Chef de Travaux des Recherches agronomiques, détaché à l'I. M. F. de Marseille.

Sommaire. — L'étude de la filtration et la mesure de la perméabilité à l'eau des substances poreuses ou pulvérulentes se poursuivent principalement avec la perspective directe des applications industrielles ou agronomiques. Le phénomène est régi par la loi bien connue de DARCY (1855).

L'intérêt purement scientifique de la question demeure cependant indiscutable dans le cadre des grands problèmes de la Mécanique des Fluides. Aussi, avons-nous jugé que les applications pratiques, multiples et primordiales, qui sont du reste à l'origine des études sur la perméabilité, pourront profiter de recherches de Laboratoire entreprises dans un esprit nouveau.

Dans ce Mémoire nous développons les points suivants :

I. Terminologie. Notations. Lois.
II. Historique.
III. Point de vue actuel du problème de la filtration.
IV. Le perméabilimètre de précision.
V. Conclusions. Bibliographie.

I. Terminologie. Notations. Lois.

1. **Définitions générales.** — Considérons l'écoulement d'un liquide à travers les pores ou interstices d'une couche perméable. Nous supposons que la substance poreuse est parfaitement mouillée (1), et que le régime est permanent. Pour fixer les idées, nous pouvons nous représenter l'expérience élémentaire d'un filtre cylindrique formé par une colonne de sable contenue dans un tube. La *filtration* est le passage du liquide à travers la couche perméable.

Pour des conditions expérimentales données, il suffit de connaître le volume fluide qui, par unité de temps, traverse l'unité de section dans une direction déterminée; cette grandeur, homogène à une vitesse, porte le nom de *vitesse de filtration*.

Il s'agit non seulement de mesurer cette vitesse, mais il faut encore discerner l'ensemble des facteurs susceptibles de l'influencer. Au premier examen, ces facteurs déterminants se groupent en deux catégories, suivant qu'ils intéressent la *couche perméable* ou le *liquide filtrant*.

Nous rencontrons ainsi une série de variables et de paramètres, dont nous ferons apparaître le rôle dans la *loi générale* exprimant la vitesse de filtration.

(1) Nous éliminons de cette discussion le problème particulier de l'imprégnation d'une substance poreuse initialement sèche (phénomène de l'imbibition); nous supposons au contraire la substance complètement noyée, avec niveau liquide situé au-dessus du sommet de la couche perméable, pour éliminer les forces de capillarité.

2. **La couche perméable.** — En partant de considérations strictement qualitatives, les facteurs caractéristiques de la couche perméable sont :

a. La nature physique. — On distingue les substances pulvérulentes constituées par la juxtaposition naturelle ou artificielle de particules solides disposées au hasard (sable, argile, terre), et les substances poreuses constituées par l'assemblage définitif de leurs éléments soudés entre eux (porcelaine, matériaux de construction). Nous nous limitons ici aux substances pulvérulentes, telles que le sable par exemple.

b. La nature chimique. — On distingue les substances qui absorbent le liquide filtrant, de celles qui se laissent traverser sans subir de modification interne. Nous nous bornons exclusivement aux substances de la seconde catégorie (substances inertes), car elles s'identifient avec les corps pulvérulents naturels qui intéressent l'Agronomie ou l'Hydrodynamique; le sable et l'argile notamment rentrent dans cette famille (2).

(2) La présence d'humus, ce qui est très fréquent pour le sable ou l'argile, fait rentrer la substance dans la première catégorie.

c. La forme et les dimensions des particules. — Ces deux paramètres géométriques sont en fait inséparables. Suivant l'origine et l'âge, les particules possèdent en effet des formes et des dimensions les plus diverses :

— grains polyédriques à arêtes vives, issus d'une désagrégation relativement récente (lamelles, aiguilles, cristaux, etc.);

— grains arrondis ayant subi une modification profonde de leur forme extérieure initiale (granules, ovoïdes, sable roulé, etc.).

Il est de même indispensable pour l'expérimentateur de connaître les dimensions absolues des particules. Pour une forme géométrique donnée, il suffit de mesurer un axe principal, par exemple le grand axe d'un ovoïde. Mais on peut également introduire une dimension linéaire moyenne, et cela de deux manières :

— du point de vue géométrique, on peut caractériser la particule par le diamètre de la sphère équivalente (diamètre géométrique);

— du point de vue hydrodynamique, on peut définir le diamètre de la sphère qui, dans le mouvement relatif considéré, se comporte dynamiquement comme la particule (diamètre hydraulique).

On arrive ainsi à la notion fondamentale de *diamètre équivalent.*

d. La courbe granulométrique. — Quelle que soit la forme des particules, ces dernières sont caractérisées par une gamme plus ou moins étendue des diamètres équivalents, si une opération préalable de sélectionnement (3) n'a pas réduit la dispersion de leurs dimensions.

L'étude statistique de cette dispersion est condensée dans la *courbe granulométrique.*

Soient :

D, le diamètre équivalent d'une particule;

D_i, le diamètre équivalent inférieur;

D_s, le diamètre équivalent supérieur, $D_i < D < D_s$;

$P_{D_i D_s}$, le poids total de l'échantillon examiné;

$P_{D_i D}$, le poids des particules de diamètre inférieur à D;

n, le pourcentage en poids correspondant.

On a donc

$$n = \frac{P_{D_i D}}{P_{D_i D_s}} = f(D),$$

fonction dont la représentation graphique fournit la courbe granulométrique; sa détermination expérimentale est faite grâce aux méthodes classiques de sélectionnement; son emploi est précieux pour le calcul des diamètres moyens des particules :

(3) Selon les cas, le sélectionnement des particules s'effectue par tamisage, sédimentation, lévigation, etc., opérations bien connues dans les Laboratoires.

$\overline{D} = \int_0^1 D.dn$ est le *diamètre moyen granulométrique*, avec $D = F(n)$ fonction inverse de $n = f(D)$; dans le cas particulier où la courbe granulométrique est une droite, on aura le résultat évident

$$\overline{D} = \frac{1}{2}(D_i + D_s).$$

$(D_{eff})^2 = \int_0^1 D^2.dn$ est le *diamètre efficace granulométrique;* cette grandeur est appelée à jouer un grand rôle dans la loi de filtration, étant donné que les diamètres des particules interviennent par leur carré (Conf. n° 5).

e. Le volume des pores, porosité. — Le volume apparent et la densité apparente d'une substance perméable sont susceptibles d'évoluer suivant l'âge, le traitement et la durée de service de l'échantillon; on détermine d'ailleurs expérimentalement les limites supérieures et inférieures correspondantes (tassement ou dilatation). Il en est de même du volume des vides ou des pores, dont la vitesse de filtration est manifestement une fonction croissante; il importe donc de connaître ce volume, aussi bien par sa valeur absolue initiale que par ses variations relatives au cours du temps.

On évalue le volume des vides, en imaginant la séparation des particules solides et des pores interstitiels, grâce à une fusion fictive de l'échantillon conduisant à un volume réduit compact, sans changement de la densité absolue. On peut concrétiser cette idée, en considérant le cas cylindrique d'un échantillon contenu dans un tube : on mesurera alors la hauteur apparente et l'on calculera la hauteur réduite.

Soient :

v, l, le volume apparent (hauteur) de l'échantillon initial;

δ, la densité apparente correspondante;

v_0, l_0, le volume compact (hauteur réduite) du bloc fondu;

δ_0, la densité absolue;

Δv, le volume des vides;

$\mathcal{P}$, le pourcentage des vides rapporté au volume apparent.

On aura

$$\mathcal{P} = \frac{\Delta v}{v} = \frac{v - v_0}{v} = 1 - \frac{v_0}{v} = 1 - \frac{l_0}{l} = 1 - \frac{\delta}{\delta_0}.$$

C'est l'expression de la *porosité*, que l'on peut donc évaluer indifféremment, soit en partant des densités, soit en introduisant les hauteurs.

3. **Le liquide filtrant.** — Nous passons ainsi du problème géométrique de la couche perméable

au problème hydrodynamique proprement dit; les facteurs déterminants sont :

a. La nature du liquide. — La vitesse de filtration est sous la double influence de la *densité* et de la *viscosité* du liquide. Nous nous limitons exclusivement aux liquides neutres vis-à-vis de la substance perméable, de même nous ne considérons ici que les liquides dits « normaux » ([4]).

b. La température. — De cette variable dépendent les deux constantes physiques du liquide filtrant.

c. La pression et la vitesse de filtration. — Ce sont les variables hydrodynamiques fondamentales. Pour réaliser le régime permanent, la charge motrice doit être maintenue constante.

4. **Notations.** — Nous pouvons alors dresser le tableau suivant, conforme aux notations habituellement adoptées en Mécanique des Fluides :

- D, diamètre équivalent des particules;
- δ, δ_0, densité de la couche perméable (apparente et absolue);
- l, l_0, hauteur de la couche (réelle et réduite);
- $\mathcal{P}$, porosité;
- ρ, masse spécifique du liquide;
- μ, coefficient de viscosité absolu;
- $\nu = \frac{\mu}{\rho}$, coefficient de viscosité cinématique;
- H, charge motrice;
- $p = \rho g H$, pression motrice;
- Q, débit en volume;
- S, section de la colonne (phénomène cylindrique);
- $V = \frac{Q}{S}$, vitesse de filtration;
- θ, température;
- g, accélération de la pesanteur.

5. **Lois générales. Constantes de filtration.** — En écrivant que la vitesse V est une fonction des cinq variables ρ, μ, H, l, D, la méthode classique de l'Analyse Dimensionnelle donne l'expression de V, en admettant que le régime est laminaire et uniforme

$$V = k D^2 \frac{\rho g}{\mu} \frac{H}{l}.$$

La structure de la formule est évidente, si l'on se réfère aux problèmes du mouvement des fluides visqueux de Stokes ou de Poiseuille ([5]). Le coefficient k tient compte de la forme des particules, et aussi de leur connexion, comme les facteurs numériques de Stokes ou de Poiseuille sont conditionnés par les données géométriques; le coefficient k devra donc nécessairement englober l'influence de la porosité $\mathcal{P}$, il demeure bien entendu sans dimensions.

Nous pouvons alors donner à l'expression ci-dessus diverses formes intéressantes conduisant à la définition des constantes de filtration.

Constante de filtration absolue. — En faisant apparaître la porosité $\mathcal{P}$ dans le coefficient $k = k(\mathcal{P})$, on aura la formule la plus générale, tenant compte du rôle de tous les paramètres caractéristiques

$$V = k(\mathcal{P}) D^2 \frac{\rho g}{\mu} \frac{H}{l} \quad \text{(loi générale)}, \qquad \text{(I)}$$

k est la constante de filtration absolue (sans dimensions).

Constante de filtration géométrique. — En explicitant seulement les paramètres ρ, μ, H, l, ce qui revient à grouper dans une même constante tous les paramètres géométriques, on obtient une deuxième formule

$$V = K \frac{\rho g}{\mu} \frac{H}{l}, \qquad \text{(II)}$$

K est la constante de filtration géométrique (homogène à une surface).

Constante de filtration physique. — Enfin, en considérant uniquement les variables fondamentales H et l, en réunissant dans un même coefficient tous les paramètres géométriques et physiques, on aboutit à la troisième formule

$$V = C \frac{H}{l} \quad \text{(loi de Darcy)}, \qquad \text{(III)}$$

C est la constante de filtration physique (homogène à une vitesse).

II. Historique.

6. **Aperçu critique.** — On trouvera à la fin de ce Mémoire une revue bibliographique des travaux relatifs à la filtration. Il nous a paru indispensable de donner ici une analyse succincte des recherches et des idées directrices se rapprochant de nos préoccupations. Pour la clarté de l'exposition, nous aurons recours, autant que possible, aux notations introduites plus haut.

H. Darcy (1855) [1] a le premier étudié d'une façon systématique la filtration de l'eau dans du sable de rivière (Saône).

Les expériences l'ont conduit à formuler que la vitesse de filtration est proportionnelle à la charge motrice et inversement proportionnelle à l'épaisseur de la couche perméable

$$V = C \frac{H}{l},$$

([4]) Il s'agit cependant de ne pas perdre de vue l'existence de liquides dits « anormaux », dont le coefficient de viscosité est fonction du gradient de vitesse. Nous ferons à la fin de ce Mémoire une remarque sur l'intérêt que présente l'étude de ces liquides (Chap. V, n° **16**).

([5]) *Voir* notamment Chapitre II, n° **8**.

C est la constante bien connue de Darcy, qui s'identifie avec notre constante de filtration physique. Les caractéristiques des expériences sont : hauteur de sable, variable, pouvant atteindre 3,50 m; charge motrice, comprise entre 1,11 et 13,93 m.

T. Tate (1860) [2] fait des recherches expérimentales sur la filtration des liquides à travers les substances poreuses; il étudie en particulier le charbon de bois, le coke, les éponges et les étoffes de laine.

Il constate que la vitesse de filtration est proportionnelle à la charge, mais avec une approximation moins bonne sous de faibles pressions et pour les deux dernières substances citées.

Pour le papier sans colle, la loi de proportionnalité n'est pas toujours vérifiée. Tate observe que certains filtres subissent, par le passage de l'eau, une « modification moléculaire progressive », dont il ne donne du reste aucune explication. Cette modification interne se traduit par une diminution du débit dans le temps, sous charge constante; il existe une limite critique inférieure de la vitesse (effet Tate).

E. Duclaux (1872) [3] montre que le passage des liquides à travers des vases poreux s'opère conformément à la loi de Darcy; il utilise, à cet effet, la terre de pipe, le charbon de bois et le plâtre.

J. Brunhes (1881) [4] vérifie la loi de Darcy pour le sable et les vases poreux, avec l'eau, l'huile et l'acide sulfurique.

Il montre que, pour une même charge et une même épaisseur de sable, le débit est proportionnel au carré du diamètre des grains et en raison inverse de la viscosité du liquide, tout en retrouvant l'effet Tate

$$V = A \frac{\rho g}{\mu} \frac{H}{l} D^2$$

($A = 3{,}98.10^{-4}$, pour des grains sphériques).

La constante A, que Brunhes appelle le co fficient de perméabilité, correspond à notre constante de filtration absolue k, sans expliciter toutefois le rôle et la valeur de la porosité.

J. Boussinesq (1904) [5] se consacre à des recherches théoriques sur les phénomènes permanents de filtration, l'écoulement des nappes d'eau infiltrées dans le sol, et le débit des sources.

M. Porchet (1921) [6] étudie la filtration de l'eau dans le sable.

Il vérifie la loi de Darcy avec des écarts de l'ordre de 5 pour 100.

Il constate en outre qu'un échantillon perméable, initialement gorgé d'eau, retient une partie du liquide lorsqu'on l'abandonne à l'air; il conclut qu'une fraction seulement de l'eau intersticielle participe effectivement au phénomène d'écoulement.

K. V. Terzaghi (1925) [7] examine la perméabilité à l'eau des couches de sable et d'argile.

Pour l'argile, il vérifie la loi de Darcy, une trop forte compacité cependant provoque des écarts assez sensibles.

Pour les sables, il donne une expression nouvelle de la constante de Darcy, qu'il appelle du reste coefficient de perméabilité

$$B = \frac{\omega}{\nu}\left(\frac{\mathfrak{P} - 0{,}13}{\sqrt[3]{1 - \mathfrak{P}}}\right)^2 D_\omega,$$

ω est une constante qui dépend de la forme des grains;

D_ω est le diamètre déterminant, valeur fictive qui correspond à l'abscisse du point de la courbe granulométrique dont l'ordonnée est 0,1.

A. Blanc (1938) [8] s'intéresse spécialement au liquide filtrant.

Il définit l'eau mobile d'un sol, comme étant la fraction du fluide intersticiel qui participe au mouvement; il introduit aussi un coefficient de perméabilité nouveau.

M. Buisson (1942) [9] s'attache à certains aspects hydrodynamiques.

Il signale qu'il est nécessaire de tenir compte d'une correction de perte de charge, à l'entrée et à la sortie de la couche perméable, surtout lorsque cette dernière est de l'argile compacte.

V. Romanovsky (1943) [10] publie les résultats d'un travail expérimental sur la construction d'un appareil servant à mesurer la perméabilité des sols sous diverses pressions (genre d'œdomètre).

L'auteur appuie d'ailleurs la description d'un tableau de mesures relatives à quelques matériaux, dans le but de démontrer la précision et l'utilité de son appareil.

Conclusions provisoires. — L'analyse progressive des nombreux travaux sur la perméabilité des couches filtrantes, dont nous venons de donner un bref aperçu, nous conduit à faire deux remarques de principe :

a. Il était souhaitable de définir les divers coefficients de la loi de filtration, en arrêtant préalablement une terminologie claire et des notations usuelles; c'est ce que nous avons tenté de faire au début de ce Mémoire.

b. Il serait utile de faire le point de l'état actuel du problème de la filtration, pour en dégager les possibilités futures offertes aux chercheurs; c'est ce que nous essayerons de montrer dans ce qui suit.

III. — Point de vue actuel du problème de la filtration.

7. La dispersion des recherches. — Les nombreuses publications sur la filtration, échelonnées dans le temps sans aucun lien de continuité, se signalent d'abord par le manque de coordination de la terminologie et des notations.

Le bref aperçu historique que nous venons de donner nous révèle ensuite l'existence de divergences dans la conception même du problème, et cela principalement quant à l'exécution et l'interprétation des recherches expérimentales.

Les causes de cette dispersion regrettable semblent résider dans le fait que le problème de la filtration a vu son essor grâce aux besoins immédiats de la Technique. Il ne subsiste pas moins l'utilité de situer la question dans le cadre des grands problèmes de la Mécanique des Fluides :

— *pour dégager les caractéristiques essentielles souvent négligées dans la conception du phénomène et l'interprétation des lois;*

— *pour définir nettement les conditions expérimentales à remplir lors de l'exécution des mesures.*

8. Conceptions du phénomène de la filtration. — *Une mesure de perméabilité est équivalente à une mesure de viscosité, avec ses caractéristiques théoriques et ses difficultés expérimentales.* L'on y rencontre en effet successivement :

Les données hydrodynamiques des écoulements visqueux;

Les conditions aux limites initiales d'ordre géométrique;

Les mesures, les formules et les corrections de la viscosimétrie.

La filtration d'un liquide à travers un massif pulvérulent peut être interprétée suivant deux conceptions différentes.

a. Conception de Stokes. — *Le massif est équivalent, par ses particules solides, à l'assemblage serré d'un grand nombre d'obstacles autour desquels coule le liquide filtrant. Nous reproduisons, en mouvement relatif, l'expérience classique du viscosimètre de chute (formule de Stokes).*

L'aspect séduisant de l'interprétation résulte de l'analogie que l'on peut faire avec les suspensions colloïdales. Il est facile de procéder à la mise en équation du problème dans le cas particulier où toutes les particules sont égales et sphériques [6].

Une difficulté pourtant se présente dès l'instant où nous supposons les particules inégales, c'est-à-dire dès que nous nous plaçons dans le cas réel d'une courbe granulométrique définie; parmi l'ensemble des particules qui sont toutes en contact direct, celles de faible diamètre ont tendance à se loger dans les interstices de leurs voisines de grand diamètre; la répartition spatiale est loin d'être arbitraire et chaotique. Il subsiste pourtant une voie d'investigation expérimentale :

Opérer par analyse, en effectuant des *sélectionnements successifs* des particules, de façon à disposer d'échantillons homogènes.

Procéder par synthèse, en réalisant des *mélanges progressifs,* de manière à composer une courbe granulométrique artificielle.

b. Conception de Poiseuille. — *Le massif est équivalent, par ses interstices, à un enchevêtrement de canaux microscopiques irréguliers, dans lesquels avance le liquide filtrant. Nous reproduisons ici l'expérience du viscosimètre capillaire (formule de Poiseuille).*

La mise en équation est élémentaire, on retrouve bien entendu la loi générale de filtration, la vitesse V étant proportionnelle au gradient $\frac{H}{l}$ et à un paramètre de surface, en raison inverse du coefficient de viscosité cinématique ν.

Une remarque s'impose au sujet du paramètre de surface : au lieu de représenter le carré D^2 du diamètre des particules, ce paramètre est en réalité le carré d^2 du diamètre des pores; le rapport de ces deux grandeurs est évidemment une constante caractéristique de la forme des grains et de la courbe granulométrique.

Le phénomène réel est pourtant très complexe, le mouvement n'étant permanent qu'en moyenne, l'écoulement à l'échelle microscopique n'étant jamais et nulle part cylindrique; *nous avons, au contraire, dans tout le champ du massif, une dispersion ininterrompue de trajectoires fluides, avec des bifurcations et des ramifications incessantes.* D'ores et déjà on peut proposer l'étude strictement qualitative du phénomène. Notons du reste que l'étude statistique signalée au sujet de la conception de Stokes conserve tout son intérêt, puisqu'il demeure toujours loisible d'examiner les effets d'un sélectionnement en D ou en d.

Il est hors de doute que la conception de Poiseuille fournit la meilleure interprétation du phénomène de la filtration; c'est en nous basant sur elle, que nous allons poursuivre notre étude.

Une mesure de perméabilité est donc équivalente à une mesure effectuée avec un viscosimètre capillaire.

9. Interprétation des lois : Variables et constantes. — Nous avons donné à la loi de filtration trois formes distinctes qui, suivant le but assigné, peuvent servir soit dans les applications indus-

[6] On aboutit naturellement à l'expression générale de la vitesse de filtration donnée au Chapitre I, n° **5**. Le coefficient numérique demeure indéterminé, l'interaction mutuelle des particules engendre en effet des difficultés insurmontables pour une théorie complète.

trielles, soit dans les études scientifiques (Chap. I, n° 5).

Choix des lois. — Nous proposons d'évaluer la constante de filtration physique, déduite de la formule (III) (loi de Darcy); par sa commodité et sa structure très simple, cette loi continue à jouer un rôle primordial dans les applications pratiques et industrielles. Nous préconisons d'évaluer parallèlement la constante de filtration géométrique, déduite de la formule (II); cette forme de la loi de filtration convient particulièrement à l'interprétation de recherches systématiques; il est possible, en principe, de remonter à la constante de filtration absolue définie par la formule (I); cela implique la connaissance des diamètres équivalents et du rôle quantitatif de la porosité; de telles recherches sont en cours.

Les variables effectives. — Dans tous les cas, et quel que soit le but poursuivi, nous aurons à mesurer les variables fondamentales du phénomène, à savoir la vitesse de filtration et la charge motrice.

a. La vitesse de filtration V est mesurée directement comme dans un viscosimètre capillaire; c'est la vitesse moyenne physique, qui ne peut être confondue avec la vitesse moyenne hydrodynamique dans les espaces capillaires (vitesse d'infiltration), à laquelle elle est proportionnelle.

b. La charge motrice H est définie selon les règles habituelles de l'hydrodynamique; elle est mesurée avec les précautions indispensables du Laboratoire; elle représente, selon les conceptions classiques, la somme arithmétique de la perte de charge de Poiseuille (due exclusivement au frottement visqueux), et de la correction de force vive (due à la perte d'énergie potentielle du liquide filtrant). Pour rendre cette correction négligeable, de manière à vérifier directement la proportionnalité débit-pression, il suffit de choisir une colonne filtrante très allongée ([7]).

10. **Mesures de précision.** — L'étude de la perméabilité d'un échantillon consiste donc dans l'établissement de la loi de dépendance débit-pression, sous réserve que le régime soit permanent et que tous les autres paramètres de la couche perméable et du liquide filtrant soient connus et, surtout, demeurent invariables au cours des mesures.

Conditions expérimentales. — Les paramètres définis dès le début de ce travail sont, la composition et la porosité de la couche perméable, les diverses constantes physico-chimiques du liquide filtrant.

Il est hors de doute qu'une mesure de perméabilité pourra, et devra atteindre la précision des mesures de viscosité, c'est-à-dire 0,2 pour 100 très facilement; il faudra, pour cela, respecter les conditions paramétriques, et mesurer avec une précision suffisante les variables effectives.

Dès lors se dessinent clairement les caractéristiques opératoires.

Caractéristiques préliminaires. — Elles concernent la couche perméable et le liquide filtrant; elles résultent en somme d'analyses préalables (d'ordre chimique, physique et mécanique).

Caractéristiques effectives. — Elles définissent le phénomène de la filtration proprement dit, par la porosité (ou le volume) de la couche perméable, par la pression motrice et le débit du liquide filtrant.

Le volume de la couche perméable doit être rigoureusement constant et susceptible d'être mesuré et contrôlé à chaque instant, des variations *a priori* insignifiantes provoquent, par le changement de la porosité, des modifications considérables de la constante de filtration.

Une colonne pulvérulente est en effet loin de présenter la cohésion et la rigidité d'une colonne compacte; elle est douée au contraire d'une mobilité surprenante, amplifiée et entretenue par l'écoulement du liquide filtrant dans les canaux capillaires. C'est pour cela qu'il est indispensable d'emprisonner l'échantillon dans un espace cylindrique, entre deux sections droites matérialisées par des grilles à perte de charge négligeable, l'une étant fixe, l'autre étant portée par un piston mobile ([8]).

De cette manière on pourra mesurer le volume effectif, et repérer aussi ses variations éventuelles dans le temps.

La pression motrice doit être maintenue rigoureusement constante grâce à un système de réglage approprié; la mesure devra s'effectuer avec une erreur relative en accord avec la précision à réaliser; dans ce but, un dispositif manométrique absolu devra fournir la différence de pression en amont et en aval de la colonne perméable, en des points où la vitesse hydrodynamique locale est pratiquement nulle.

Le débit enfin, dont on déduira la vitesse de filtration, connaissant la section exacte de la colonne, doit être déterminé obligatoirement à partir de mesures pondérales.

([7]) Il en est tout différemment dans le cas des couches filtrantes de faible épaisseur. Ce problème important n'est pas envisagé dans cette étude générale. Nous remarquons cependant qu'il en constitue un cas limite dans la même mesure qu'un capillaire court se différentie d'un capillaire très allongé. Il est bon de ne pas oublier cette vérité qui explique certains écarts trouvés dans la vérification de la loi de Darcy.

([8]) L'emploi de cloisons rigides pour délimiter le volume de la colonne filtrante, en porcelaine par exemple, est évidemment très tentant, mais la perte de charge propre de tels bouchons peut devenir de l'ordre de la perte de charge de la colonne filtrante : l'importance et l'aléa des corrections réduit naturellement la précision des mesures

IV. Le perméabilimètre de précision.

11. **Description de l'instrument.** — Le perméabilimètre de précision que nous avons construit et mis au point se compose de quatre parties essentielles :

a. Le filtromètre ou tube de filtration proprement dit;

b. Le réservoir à niveau constant pour la mesure du débit;

c. Le dispositif manométrique pour la mesure de la pression motrice;

d. Le support et les divers accessoires.

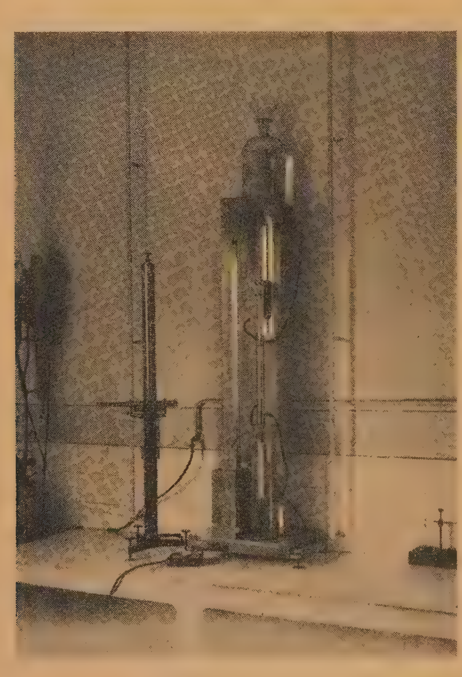


Fig. 1. — Vue d'ensemble de l'installation.

La photographie de la figure 1 représente l'appareil en état de fonctionnement; les détails de construction et notamment le filtromètre, sont montrés figure 2.

a. Le filtromètre (*fig.* 2) est constitué par un tube de Pyrex F, vertical et bien cylindrique; sa partie inférieure est prolongée par un manchon métallique M dont le fond, fortement ajouré, est recouvert d'une grille de retenue pour la colonne perméable. La fixation de ce manchon est assurée par un système de tiges filetées qui rejoignent une bague de serrage S à la partie supérieure du tube de filtration. Cette bague est prolongée par un bras horizontal R, destiné au montage et au réglage du filtromètre sur le bâti B de l'appareil.

Ainsi monté, le filtromètre est prêt à recevoir l'échantillon E à examiner. La parfaite définition de la colonne perméable est réalisée grâce à un piston mobile P, ajouré et muni d'une grille de compression suivant une disposition symétrique à celle du fond du manchon [9]; le piston est lui-même centré à l'aide d'une tige de guidage G. La hauteur de la colonne perméable — ou ses variations éventuelles — sont repérées au cathétomètre par visées de deux repères, dont l'un X, fixe, est gravé sur le tube de filtration, et dont l'autre Y, mobile, est porté par la tige de guidage du piston.

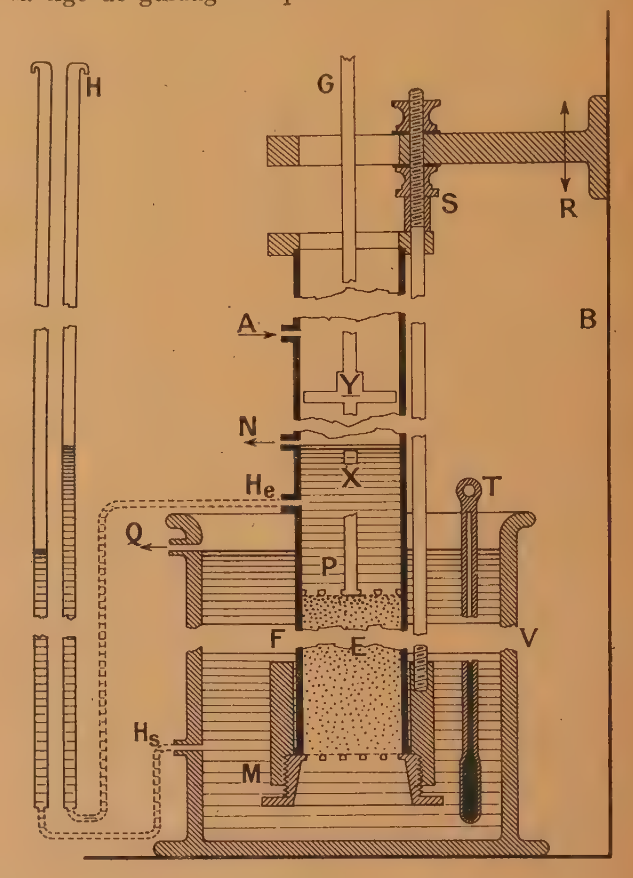


Fig. 2. — Organisation du filtromètre.

F, tube de Pyrex du filtromètre ; M, manchon avec grille de retenue ; S, serrage par tiges et bague ; R, réglage du bras de fixation ; B, bâti de l'instrument ; E, échantillon perméable ; P, piston mobile avec grille de compression ; G, tige de guidage du piston mobile ; X, repère fixe gravé sur le tube de filtration ; Y, repère mobile porté par la tige de guidage ; V, vase à niveau constant ; A, alimentation en liquide filtrant ; N, niveau constant ; H_e, pression d'entrée ; H_s, pression de sortie ; Q, débit ; H, tubes piézométriques ; T, thermomètre.

Trois tubulures latérales complètent le filtromètre :

— alimentation en liquide filtrant A;
— niveau constant par déversoir N;
— pression d'entrée H*e*.

[9] Les grilles du piston mobile et du fond du manchon sont identiques; elles sont découpées dans le tamis à petite maille servant au sélectionnement préalable de l'échantillon.

b. Le réservoir à niveau constant est constitué par un vase V, cylindrique et de grand diamètre, très profond pour permettre les variations de charge au cours des mesures.

Deux orifices latéraux ont pour but respectif de mesurer :

— le débit, à niveau constant, par déversoir ou par siphon Q;

— la pression de sortie H*s*.

c. Le dispositif manométrique se compose de deux tubes piézométriques H, identiques et verticaux, reliés aux tubulures correspondantes du filtromètre et du vase à niveau constant, H*e* et H*s*, qui fournissent la pression d'entrée et de sortie de l'instrument.

d. Le support et les divers accessoires. — Le bâti du filtromètre comporte un tablier horizontal muni de niveaux de réglage et de vis de calage.

Les accessoires suivants complètent l'installation :

La réserve de liquide filtrant;
Des flacons pour mesurer le débit;
Un cathétomètre pour mesurer les dénivellations (vernier au 1/50e);
Un chronomètre (1/5e de seconde);
Une balance de précision;
Un thermomètre (1/10°).

12. **Précision des mesures.** — Ainsi que nous l'avons fait prévoir, les mesures devront atteindre une précision de 0,2 pour 100. Le fait de fournir les constantes de Darcy avec un nombre de chiffres significatifs supérieur à 2 est, peut-être, sans grande utilité pour certaines applications industrielles, mais il est absolument indispensable pour une étude scientifique de la filtration; nous y reviendrons du reste dans les conclusions de ce Mémoire.

Si nous déterminons par exemple la constante de filtration physique (constante de Darcy), d'après la formule (III) du n° 5,

$$V = C\frac{H}{l}, \qquad \text{soit} \quad C = \frac{Vl}{H} = \frac{Ql}{SH},$$

les quatre quantités Q, l, S, H interviennent dans le calcul d'erreur :

S et l sont les caractéristiques géométriques de la colonne, en principe invariables;
Q et H sont les deux variables hydrodynamiques du phénomène à mesurer.

Approximation de S,

$$\frac{\Delta S}{S} < 3.10^{-4}.$$

C'est une caractéristique définitive du filtromètre; celui-ci a été calibré au mercure, une fois pour toutes, dans sa partie d'utilisation.

Approximation de l,

$$\frac{\Delta l}{l} < 2.10^{-4}.$$

Le principe combiné du piston mobile et des repères permet facilement d'atteindre cette précision dans la mesure différentielle des hauteurs.

Approximation de Q,

$$\frac{\Delta Q}{Q} < 5.10^{-4}.$$

La mesure du débit est faite par voie pondérale, en tenant compte bien entendu de la densité du liquide filtrant.

Approximation de H,

$$\frac{\Delta H}{H} < 5.10^{-4}.$$

Il n'est guère possible, pour une opération courante et sans précautions spéciales, de réduire cette valeur.

Calcul de C. — Ainsi l'erreur relative commise dans la détermination de la constante de filtration C est certainement inférieure à 2.10^{-3}, c'est-à-dire à 0,2 pour 100; c'est l'erreur relative intrinsèque, en tenant compte de toutes les causes d'erreur, les approximations géométriques comprises.

Mais si nous effectuons une série de mesures dans lesquelles la hauteur de la colonne perméable n'a pas varié à la sensibilité près des mesures, les diverses valeurs de C ne peuvent plus différer que par les erreurs commises sur H et Q; on définit de cette façon l'erreur relative interne du perméabilimètre, qui devient inférieure à 1.10^{-3}, soit 0,1 pour 100.

13. **Corrections.** — Comme en viscosimétrie, les corrections à envisager éventuellement sont la correction de température et la correction de force vive.

a. La correction de température. — Il est indispensable de tenir compte de l'influence de la température sur la constante de filtration physique, par l'intervention du coefficient de viscosité ν. Il est recommandé, au cours d'un essai, de maintenir la température constante à 0°,1 près.

Pour comparer entre elles des mesures effectuées à des températures différentes θ, on les ramènera à la même température θ_0, en écrivant

$$C_0 = C\frac{\nu}{\nu_0}.$$

b. La correction de force vive. — Cette correction existe pour les mêmes raisons, et au même degré, comme dans un viscosimètre capillaire; nous avons déjà montré (Chap. III, n° 9), qu'elle peut être rendue négligeable, pour peu que la hauteur de la colonne perméable devienne grande par rapport aux dimensions absolues des particules (canaux

capillaires très allongés); le critérium de la loi de Darcy sera alors la proportionnalité du débit aux pressions motrices.

Il est facile, par un calcul rapide et élémentaire, de se rendre compte de l'ordre de grandeur de la correction de force vive.

14. **Exemple de mesure de constantes de filtration.** — Un essai complet de perméabilité d'un échantillon comprend donc deux étapes successives distinctes, l'analyse et les mesures.



Fig. 3. — Forme des grains de quartz sélectionnés (0,2 mm $< D <$ 0,4 mm). (Grossissement 8.)

a. L'analyse. — C'est l'ensemble des opérations préliminaires qui consistent à déterminer, ou à délimiter, les propriétés chimiques, physiques et mécaniques de l'échantillon; il s'agit principalement de fixer, sans aucune ambiguïté, le mode et les limites de sélectionnement granulométrique.

b. Les mesures. — Ce sont les opérations définitives qui consistent à déterminer simultanément les variables débit et pression. Les formules d'utilisation (III) et (II) servent au calcul des constantes de filtration. Il s'agit, conjointement, de connaître la valeur exacte de la porosité.

Nous allons enfin illustrer cette étude générale en faisant suivre le procès-verbal complet des essais de perméabilité d'un échantillon de *sable de Fontainebleau;* le lecteur vérifiera facilement les degrés de précision intrinsèque et interne des mesures (p. 143).

Les microphotographies des figures 3 et 4 complètent ces essais, en montrant la forme et l'aspect des grains de sable [10].

[10] Nous exprimons ici nos vifs remercîments à M. Canac, Directeur du Centre des Recherches Scientifiques, Industrielles et Maritimes de Marseille, et ses deux collaborateurs, MM. Dratz et Michaud, pour le concours bienveillant qu'ils ont apporté, en mettant à notre disposition les laboratoires d'optique puissamment outillés du Centre.

V. Conclusions.

Le perméabilimètre que nous venons de présenter est destiné à remplir une double fonction :

a. Il servira à des recherches de Laboratoire;

b. Il pourra être utilisé pour des essais industriels.

15. **Applicatfons industrielles.** — L'appareil de mesure est susceptible de fournir, avec des opérations strictement de série, les constantes de filtration de substances pulvérulentes telles que le sable.

La précision des mesures est largement suffisante, mais utile, pour les besoins industriels, et cela dans des conditions parfaitement connues de la porosité.



Fig. 4. — Aspect de la section supérieure de la colonne filtrante. (Grossissement 8.)

L'instrument pourra même être employé pour l'examen de substances colloïdales telles que l'argile, en prenant des précautions spéciales.

16. **Applications scientifiques.** — Le rôle essentiel de notre perméabilimètre est évidemment dévolu aux recherches systématiques de Laboratoire. Nous terminons ce Mémoire en donnant un programme de travaux à entreprendre, dont quelques-uns sont d'ailleurs en voie d'exécution.

Vérification de la loi de Darcy. — Cette vérification vient d'être faite à 1/1000e près, ainsi que le confirment les mesures rapportées plus haut. Mais il y a lieu d'envisager une étude systématique en faisant varier la substance, le sélectionnement, la pression et le liquide filtrant.

Influence de la porosité. — Celle-ci est considérable. La mesure absolue de la porosité peut être effectuée avec une grande certitude, ses variations éventuelles peuvent être enregistrées à chaque

Essais de perméabilité.

I.M.F. Marseille.	*Liquide :* Eau distillée.	Début des essais : 3 mars 1944.
Laboratoire de viscosité.	*Echantillon :* Sable de Fontainebleau.	Date des mesures : 24 mars 1944
Opérateurs : S. et H.	*Origine :* Rhône-Poulenc.	($g = 980,5$).

I. Analyse.

Caractéristiques chimiques.

Composition .... SiO^2 (99,9 %)
Traitement à l'Usine.................... Lavage aux acides
Préparation au Laboratoire.............. Lavage à l'eau. Ébullition

Caractéristiques granulométriques.

Sélectionnement .... Tamisages par mailles carrées
Granulométrie .... 0,2 mm $< D <$ 0,4 mm (voir *fig.* 3 et 4)
Cristallographie.................... Quartz (diagramme Rayons X)

Constantes physiques.

Densité absolue δ_0.................... 2,650
» apparente δ.................... 1,46 à 1,70
Porosité géométrique $\mathfrak{T}$.................... 0,45 à 0,36

II. Données.

Constantes mécaniques.

Poids de l'échantillon P (g).................... 120,00
Section de la colonne S (cm²).................... 5,475
Hauteur réduite de la colonne l_0 (cm).................... 8,270

Évolution de la colonne.

	Hauteur.	Porosité.
Limite supérieure....................	15,0	0,45
Début des essais (3 mars 1944)....................	14,370	0,4245
Mesures définitives (24 mars 1944)....................	13,816	0,4014
Limite inférieure	12,9	0,36

III. Mesures.

Date : 24 mars 1944.

	Liquide filtrant.			Échantillon.		Pression.	Débit.	Constantes de filtration.	
	Température θ.	Densité ρ.	Viscosité μ.	Hauteur l (cm).	Porosité $\mathfrak{T}$.	He — Hs. H.	Vol/sec Q.	Physique C.	Géométrique K.
17h 15......	15°,1	0,9991	0,01138	13,816	0,4014	8,530	0,10669	$3,156.10^{-2}$	$3,666.10^{-7}$
17 45......	15,1	0,9991	0,01138	13,816	0,4014	16,430	0,20594	3,163 »	3,674 »
18 25......	15,1	0,9991	0,01138	13,816	0,4014	29,464	0,36917	3,162 »	3,673 »

instant. Dès lors on pourra étudier empiriquement la loi d'action du paramètre « $\mathfrak{T}$ », et déterminer les coefficients numériques de la loi de filtration [formule (I), n° 5]. On rejoint ici le domaine des travaux de Brunhes [4].

Rôle de la courbe granulométrique. — Nous proposons de mettre en pratique les conceptions développées au n° 8 de cette étude. Il faudra commencer par examiner des échantillons pulvérulents dont le sélectionnement granulométrique est très poussé, aussi bien pour les dimensions que pour la forme, quitte à s'adresser à des matériaux de fabrication artificielle. On composera ensuite des mélanges progressifs à partir de constituants élémentaires connus et étudiés. On créera ainsi

des courbes granulométriques artificielles auxquelles on pourra donner les allures les plus variées.

Étude du liquide filtrant. — Dans tout ce qui précède, nous avons admis implicitement le caractère « neutre » et « normal » du liquide filtrant : le coefficient de viscosité est indépendant du gradient de vitesse.

Il y aura lieu cependant de considérer la classe particulièrement importante des liquides «anormaux», leur coefficient de viscosité variant avec le gradient de vitesse, la constante de filtration subira, en répercussion directe, des variations intéressantes à chiffrer et à étudier.

Dans ce domaine de recherches, presque inexploré et très étendu, surgit notamment un problème de l'*Industrie des Pétroles*, la filtration naturelle et l'extraction du pétrole brut dans les couches de sables pétrolifères.

Telles étaient nos idées en mettant au point le perméabilimètre, tel est le but des recherches que nous espérons continuer.

Manuscrit reçu le 15 avril 1944.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] H. Darcy (1855), *Les Fontaines publiques de Dijon* (Dunod, Paris).

[2] T. Tate (1860), *Recherches expérimentales sur les lois de l'absorption des liquides par les substances poreuses* (*Phil. Mag.*, 1860, **20**, p. 364 et 500; 1861, **21**, p. 57 et 115).

[3] E. Duclaux (1872), *Recherches sur l'écoulement des liquides à travers les espaces capillaires* (*Ann. Chim. Phys.*, 1872, **28**, p. 235).

[4] J. Brunhes (1881), *Recherches expérimentales sur le passage des liquides à travers les substances perméables et les couches filtrantes* (*Thèse de Doctorat*, Toulouse, 1881).

[5] J. Bo ssin-sq (1904), *Recherches théoriques sur l'écoulem-nt des nappes d'eau infiltrées dans le sol et sur le débit des sources. Compléments à cette étude* (*J. Math. P. A.*, 1904, F **4**, p. 5 et 363).

[6] M. Porchet (1921), *Étude de l'écoulement souterrain des eaux* (*Thèse de Doctorat*, Paris, 1923).

[7] K. Terzaghi (1925), *Extr.it de tr.vaux*, par *University of Chicago Press* (*Journ. Géolog.*, nov.-déc. 1935).

[8] A. Blanc (1938), *Les caractéristiques hydrodynamiques fondamentales des sols et leur utilisation pour l'aménagement agricole des eaux* (*Ann. Inst. Nat. Agronom.*, 1938, **30**).

[9] M Buisson (1942), *Caractéristiques physiques et mécaniques des sols* (Dunod, Paris, 1942 .

[10] V. Romanovsky (1943), *Sur un appareil permettant la détermination de la perméabilité des sols* (*C. R. Acad. Sc.*, 1943, **216**, p. 387).

Autres publications consultées :

Abraham-Sacerdote, *Recueil de Constantes physiques* (Gauthier-Villars, Paris, 1913).

Demolon, *Dynamique du sol* (Dunod, Paris, 1938).

Duclaux, *La Viscosité* (Herrmann, Paris, 1934); *Physique colloïdale et biologie* (Herrmann, Paris, 1942).

Forchheimer, *Hydraulik* (Teubner, Leipzig, 1914).

Gessner, *Analyse mécanique* (Dunod, Paris, 1936).

Regamey, *Thèse de Doctorat* (Concorde, Lausanne, 1943).

CALCULS RELATIFS A LA DÉCOMPOSITION ASYMÉTRIQUE

Par Paul RENAUD.
Faculté des Sciences de Toulouse.

Sommaire. — Une modification légère des hypothèses, faites dans les calculs de décomposition asymétrique, vient changer complètement le domaine de l'opération intéressante.

L'effet Cotton de décomposition asymétrique des racémiques, sous l'action de la lumière polarisée circulairement, ne se manifeste que dans des conditions très particulières, qu'il faut déterminer avec soin, pour obtenir un effet expérimental. Aussi le calcul en est important.

On admet généralement que la décomposition est monomoléculaire pour chaque variété droite ou gauche, avec une légère différence pour les deux constantes. Désignons par x_1 et x_2 les fractions restantes, au temps t, il vient

$$x_1 = e^{-kt}, \qquad x_2 = e^{-(k+\mathrm{d}k)t}.$$

On peut poser $\mathrm{d}K = K\alpha$, α est de quelques centièmes et les deux courbes sont très voisines.

Le pouvoir rotatoire, acquis par la solution considérée, est proportionnel à la différence

$$D = x_1 - x_2 = -\frac{\partial x}{\partial k}\,\mathrm{d}k = \alpha\, kt\, e^{-kt}.$$

Pour une expérience donnée, $\mathrm{d}K$ est constant, et cette différence D, nulle au début, quand t est nul, est encore nulle quand t est très grand.

Elle passe à son maximum à un instant t_m pour

lequel

$$\frac{\partial}{\partial t}\left(\frac{\partial x}{\partial k}\right) = \frac{\partial^2 x}{\partial t \, \partial k} = 0; \qquad \text{or} \qquad \frac{\partial^2 x}{\partial k \, \partial t} = e^{-kt}(kt - 1).$$

Donc

$$kt_m = 1.$$

Cette condition, indépendante de α, définit t_m au moyen de K seul. Si l'on prend t_m comme unité de durée, la durée θ de l'expérience est

$$\theta = \frac{t}{t_m} = kt.$$

A l'instant t_m correspondent les valeurs

$$\theta_m = 1, \quad (x_1)_m = e^{-1} = 0{,}368, \quad D_m = \alpha\, e^{-1} = 0{,}368\,\alpha.$$

La fraction restante x_m est constante, quels que soient K et α, pourvu que α soit assez petit pour que dK soit pratiquement une différentielle $\left(\text{inférieure à } \frac{K}{10} \text{ par exemple}\right)$. La somme $(x_1 + x_2)_m$ est alors sensiblement égale à $2\,(x_1)_m = 0{,}736$. Elle varie très peu quand α reste petit.

Par contre, la différence D_m ne dépend que de α.

Cette différence n'est intéressante que si l'on ne sépare pas les produits actifs de leurs produits de décomposition.

Si, au contraire, on les sépare les uns des autres, par une opération chimique symétrique, il restera finalement x_1 en présence de x_2 seuls. Dans ces conditions, c'est le rapport $R = \frac{x_1 - x_2}{x_1 + x_2}$ qui caractérisera le résultat de la séparation.

Dans cette nouvelle hypothèse, c'est R qu'il convient de rendre maximum et non pas D. Bien entendu, la valeur du calcul dépendra de la perfection avec laquelle est suivie la loi des réactions monomoléculaires. Cependant, il suffit qu'elle soit assez grossièrement suivie, pour que le calcul conseille des opérations nouvelles, qui semblent présenter des avantages sérieux sur les anciennes et mériter de nouvelles expériences.

Ce rapport R a sensiblement la valeur $\frac{\alpha\theta}{2}$ tant que ce produit $\alpha\theta$ est inférieur à 1. Lorsque θ est grand, il tend vers 1, car il a pour expression

$$R = \frac{1 - e^{-\alpha\theta}}{1 + e^{-\alpha\theta}} = \text{th}\,\frac{\alpha\theta}{2}.$$

Cette éventualité est peu intéressante car, déjà, lorsque θ prend la valeur 10, la fraction x a la valeur $e^{-10} \to \frac{1}{2}\,10^{-4}$, 20 kg de produit sont réduits à 1 g. Si l'on double la durée t, ils sont réduits au vingtième de milligramme, insuffisant pour le polarimètre. Nous considérerons seulement les valeurs de θ inférieures à 20 pour lesquelles $\alpha\theta$ est inférieur à 1. Le rendement R est alors proportionnel à la durée θ de l'expérience

$$R = \frac{1}{2}\alpha\theta.$$

Tandis que la fraction restante diminue exponentiellement

$$x_1 = e^{-\theta}.$$

Il convient donc de prolonger l'expérience le plus possible, tant que la fraction restante suffit à remplir la cuve du polarimètre, en admettant qu'elle soit complètement récupérable malgré la grande dilution. Sinon c'est la partie récupérable qui doit remplir la cuve.

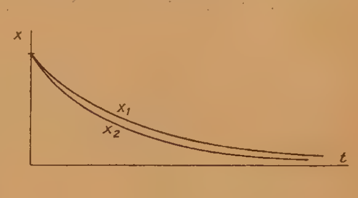


Fig. 1.

Le rendement R, qui est déjà e fois plus grand que D_m pour $\theta = 1$, pourrait être encore 10 fois plus grand, si l'on pouvait traiter une quantité de matière, qui soit e^{10} fois plus grande, que celle, m, qui peut être introduite dans le polarimètre.

Bien entendu, quand cette quantité m est atteinte, il n'y a aucun intérêt à prolonger la destruction. La déviation obtenue est alors proportionnelle au produit

$$R \times 2x_1 = \alpha\theta\, e^{-\theta} = D$$

qui diminue très rapidement quand θ est supérieur à 2, sous l'influence du facteur exponentiel. Autrement dit, la démolition des produits intéressants est bien plus rapide que la croissance de R.

Il faudra donc partir de la quantité de produit M la plus grande possible, afin de rendre θ maximum. On s'arrêtera lorsqu'elle sera réduite à m et l'on aura sensiblement

$$x_1 = \frac{m}{M} = e^{-\theta}, \qquad \text{d'où} \qquad \theta = L\,\frac{M}{m},$$

dans le cas où m peut être entièrement récupéré malgré sa grande dilution. Sinon, il faut tenir compte du facteur de récupération, qui est une fonction de la dilution.

Conclusion. — En résumé, toutes les expériences de décomposition asymétrique, qui n'ont pas réussi, pourraient être utilement reprises, quand on peut mettre en œuvre de grandes quantités de matières et séparer chimiquement, malgré une grande dilution, par des opérations symétriques, les corps actifs subsistant, des grandes masses de déchets, apparues au cours de la décomposition.

Manuscrit reçu le 29 avril 1945.

ÉTUDE DU MAGNÉTRON EN RÉGIME CONTINU, TENANT COMPTE DE LA CHARGE D'ESPACE

Par A. BLANC-LAPIERRE et G. GOUDET.

Sommaire. — L'article ci-dessous étudie le magnétron à symétrie cylindrique en l'absence d'oscillation, compte tenu de la charge d'espace. Nous considérons le cas où c'est précisément celle-ci qui limite le courant cathodique. Dans ces conditions, les trajectoires électroniques dépendent de trois paramètres, par exemple le rayon a de la cathode, le champ magnétique appliqué H et le courant I extrait par unité de longueur.

L'emploi de variables réduites permet de ne plus faire intervenir qu'une combinaison α de ceux-ci et simplifie considérablement la discussion des équations. Les trajectoires se déduisent par similitude d'une famille de courbes dépendant du paramètre α; quelques aspects typiques de celles-ci sont décrits. Quand le rayon du filament ou le champ magnétique tendent vers zéro, α augmente indéfiniment. Alors les courbes obtenues convergent très rapidement vers une trajectoire limite qui revêt, de ce fait, une importance particulière. Nous étudions enfin les caractéristiques électriques du magnétron et l'influence de la charge d'espace sur les durées de transit.

1. **Introduction.** — Le magnétron est actuellement un des dispositifs les plus fréquemment utilisés pour la production d'ondes décimétriques et centimétriques. Rappelons que c'est un tube à deux électrodes : une anode cylindrique et un filament émissif disposé suivant l'axe de celle-ci. L'anode est éventuellement fendue en plusieurs segments limités par des génératrices, mais portés au même potentiel continu. L'ensemble du tube est placé dans un champ magnétique uniforme dirigé dans la majorité des cas parallèlement à l'axe de symétrie du système.

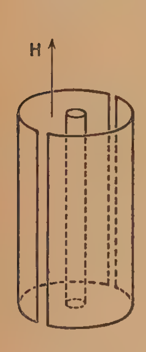


Fig. 1.

L'étude en régime continu du magnétron a été effectuée, dès 1921, par Hull [1] qui a cherché à déterminer les lois du mouvement des électrons ainsi que les caractéristiques électriques du tube. Il se place dans le cas où le filament est infiniment fin et où le courant émis est limité par la charge d'espace. Pour tenir compte de l'effet de cette dernière, il admet que la répartition de potentiel n'est pas modifiée par la présence du champ magnétique; cette répartition a été étudiée par Langmuir [2].

Nous nous sommes proposé de reprendre cette étude en nous affranchissant de cette hypothèse.

2. **Équations du problème.** — Le problème consiste à déterminer les équations du mouvement d'un électron et la répartition du potentiel V. Nous nous plaçons dans le cas où le champ magnétique $\vec{H}$ est parallèle à l'axe Oz du système. Dans ces conditions, la symétrie des données conduit à un régime permanent dans lequel la distribution de potentiel est de révolution autour de Oz. Pour des électrodes de longueur infinie, le système est de translation parallèlement à Oz et le champ électrique $-\vec{E}$ est radial. Le mouvement des électrons (de charge $-e$ et de masse m) s'effectue alors dans un plan de section droite sous l'action de la force électrique $e\vec{E}$ et de la force magnétique $\mu_0\vec{H}\wedge e\vec{v}$, μ_0 étant le pouvoir inducteur spécifique du vide dans le système d'unités employé et $\vec{v}$ la vitesse de l'électron.

Nous exprimerons les coordonnées d'un électron en fonction du temps et nous calculerons le potentiel (ou le champ électrique) au point où il se trouve. Pour déterminer ces trois inconnues, nous disposons de trois équations :

1° *Deux équations d'origine mécanique* (coordonnées polaires r, θ) :

$$m\left[\frac{d^2 r}{dt^2} - r\left(\frac{d\theta}{dt}\right)^2\right] = e\left[E - \mu_0 H r\frac{d\theta}{dt}\right] \quad \text{(axe } Or\text{)},$$

$$m\frac{1}{r}\frac{d}{dt}\left[r^2\frac{d\theta}{dt}\right] = \mu_0 e H\frac{dr}{dt} \quad \text{(axe } O\theta\text{)}.$$

Posons

$$\omega = \frac{\mu_0}{2}\frac{e}{m}H \tag{1}$$

ou, dans le système d'unités électromagnétiques C. G. S. :

$$\omega_{\text{cycles/sec}} = 0{,}887.10^7 H \text{ œrsted.}$$

Les équations du mouvement s'écrivent

$$\frac{d^2 r}{dt^2} = \frac{e}{m}E + r\left[\frac{d\theta}{dt} - \omega\right]^2 - r\omega^2, \tag{2}$$

$$\frac{d}{dt}\left[r^2\frac{d\theta}{dt}\right] = 2\omega r\frac{dr}{dt}. \tag{3}$$

L'équation (3) s'intègre aisément et fournit

$$r^2 \frac{d\theta}{dt} = \omega r^2 + \text{const.}$$

Nous admettrons que les électrons quittent le filament (de rayon a) avec une vitesse nulle; $\frac{d\theta}{dt}$ est alors nul pour $r = a$, et l'équation précédente devient

$$\frac{d\theta}{dt} = \omega \left(1 - \frac{a^2}{r^2}\right). \tag{4}$$

La vitesse angulaire $\frac{d\theta}{dt}$ ne dépend que de r. Si a est nul, elle a pour valeur ω; sinon elle lui est inférieure.

2° *L'équation de Poisson*

$$\operatorname{div} \vec{E} = \frac{4\pi\rho}{\varepsilon_0}$$

dans laquelle $-\rho$ désigne la densité de charge et ε_0 le pouvoir inducteur spécifique du vide dans le système d'unités utilisé.

E ne dépendant que de r, cette équation s'écrit

$$\frac{1}{r}\frac{d}{dr}(rE) = \frac{4\pi\rho}{\varepsilon_0}. \tag{5}$$

Pour intégrer cette équation, il est avantageux d'introduire le courant I qui traverse le cylindre d'axe Oz, de hauteur unité et de rayon r; dans un régime permanent, I est, en effet, indépendant de r. Si nous supposons que tous les électrons sont captés par l'anode, il n'existe en chaque point qu'une détermination de $\vec{v}$. I s'écrit alors

$$I = 2\pi r\rho \frac{dr}{dt}. \tag{6}$$

En éliminant ρ entre (5) et (6), on trouve

$$\frac{d}{dt}(rE) = \frac{2I}{\varepsilon_0}.$$

Supposons l'émission limitée par la charge d'espace; $\vec{E}$ est nul sur la cathode ($r = a$); on obtient par intégration

$$\varepsilon_0 rE = 2I(t - t_0),$$

où t_0 est l'instant où l'électron considéré quitte la cathode. Si nous choisissons cet instant comme origine des temps, t représente la durée de transit de l'électron et l'équation précédente s'écrit

$$\varepsilon_0 rE = 2It. \tag{7}$$

En éliminant E et θ entre les équations (2), (4) et (7), nous obtenons l'équation en r

$$\frac{d^2r}{dt^2} = \frac{2}{\varepsilon_0}\frac{e}{m}\frac{It}{r} - \omega^2 r\left(1 - \frac{a^4}{r^4}\right). \tag{8}$$

Si l'on se donne a, ω (c'est-à-dire H) et I, l'équation (8) permet de calculer r en fonction de t; θ se déduit alors de (4) et E de (7); on peut d'ailleurs obtenir V sans passer par l'intermédiaire de E en utilisant l'expression du théorème des forces vives :

$$\frac{1}{2} m\left[\left(\frac{dr}{dt}\right)^2 + r^2\left(\frac{d\theta}{dt}\right)^2\right] = eV,$$

ou, compte tenu de (4),

$$\frac{1}{2} m\left[\left(\frac{dr}{dt}\right)^2 + r^2\omega^2\left(1 - \frac{a^2}{r^2}\right)^2\right] = eV. \tag{9}$$

En tout point atteint par les électrons, le potentiel V est donc supérieur à une valeur critique V_c définie par

$$V_c = \frac{1}{2}\frac{m}{e} r^2\omega^2\left(1 - \frac{a^2}{r^2}\right)^2 \tag{10}$$

ou, en réintroduisant la valeur du champ magnétique

$$V_c = \frac{\mu_0}{8}\frac{e}{m} H^2 r^2 \left(1 - \frac{a^2}{r^2}\right)^2$$

et, pour l'application pratique,

$$V_{\text{volts}} = \frac{1}{6{,}72^2} H^2_{\text{œrsted}}\, r^2_{\text{cm}} \left(1 - \frac{a^2}{r^2}\right)^2$$

$$= 0{,}0221\, H^2_{\text{œrsted}}\, r^2_{\text{cm}} \left(1 - \frac{a^2}{r^2}\right)^2.$$

En particulier, si le potentiel d'anode est inférieur au potentiel critique correspondant, aucun électron ne peut atteindre cette électrode. Nous désignerons donc la relation (10) sous le nom « condition de coupure ».

3. **Équations réduites.** — L'équation (8), sous forme littérale, ne se prête probablement pas à une intégration rigoureuse. Cependant, par une méthode que nous exposerons plus loin, on pourrait, pour des valeurs numériques données des divers paramètres I, ω et a, obtenir, avec toute la précision désirée, les courbes intégrales et, en particulier, celle qui correspond aux conditions initiales du problème (pour $t = 0$, $r = a$ et $\frac{dr}{dt} = 0$).

La multiplicité des paramètres cités rendrait difficile l'application de cette méthode. Il est heureusement possible d'abaisser le nombre de ceux-ci par l'introduction des variables réduites suivantes, toutes sans dimensions :

$$\alpha = \frac{1}{a}\sqrt{\frac{eI}{\varepsilon_0 m\omega^3}}, \tag{11}$$

$$\tau = \omega t, \tag{12}$$

$$\xi = \frac{r}{a\alpha}, \tag{13}$$

$$U = \frac{eV}{ma^2\alpha^2\omega^2}. \tag{14}$$

L'équation du mouvement radial devient alors

$$\frac{d^2\xi}{d\tau^2} = \frac{2\tau}{\xi} - \xi\left(1 - \frac{1}{\alpha^4\xi^4}\right). \qquad (15)$$

Les nouvelles conditions initiales sont maintenant, pour $\tau = 0$,

$$\xi = \frac{1}{\alpha} \quad \text{et} \quad \frac{d\xi}{d\tau} = 0.$$

L'équation (4) fournit

$$\frac{d\theta}{d\tau} = 1 - \frac{1}{\alpha^2\xi^2}. \qquad (16)$$

L'équation (9) s'écrit enfin

$$U = \frac{1}{2}\left[\left(\frac{d\xi}{d\tau}\right)^2 + \xi^2\left(1 - \frac{1}{\alpha^2\xi^2}\right)^2\right]. \qquad (17)$$

Les équations du problème ne dépendent plus que d'un paramètre α.

Quand le rayon a tend vers zéro, α augmente indéfiniment, les équations (9), (10) et (11) prennent respectivement les formes limites suivantes :

$$\frac{d^2\xi}{d\tau^2} = \frac{2\tau}{\xi} - \xi, \qquad (15')$$

$$\frac{d\theta}{d\tau} = 1, \qquad (16')$$

$$U = \frac{1}{2}\left[\left(\frac{d\xi}{d\tau}\right)^2 + \xi^2\right]. \qquad (17')$$

4. **Intégration. Résultats.** — L'équation (15) est de la forme

$$\frac{d^2\xi}{d\tau^2} = f(\xi, \tau).$$

Pour déterminer, au voisinage d'un point $A_1(\tau_1\xi_1)$ l'intégrale possédant en ce point une pente $\left(\frac{d\xi}{d\tau}\right)_1$ donnée, on peut remplacer $f(\xi, \tau)$ par la valeur approchée et constante $f(\xi_1, \tau_1)$.

Posons

$$\Delta\xi = \xi - \xi_1 \quad \text{et} \quad \Delta\tau = \tau - \tau_1.$$

On obtient successivement

$$\frac{d\xi}{d\tau} - \left(\frac{d\xi}{d\tau}\right)_1 = f(\xi_1\tau_1)\Delta\tau, \qquad (18)$$

$$\left.\begin{aligned} \Delta\xi &= \left(\frac{d\xi}{d\tau}\right)_1\Delta\tau + \frac{1}{2}f(\xi_1\tau_1)\Delta\tau^2 \\ &= \frac{1}{2}\left[\frac{d\xi}{d\tau} + \left(\frac{d\xi}{d\tau}\right)_1\right]\Delta\tau. \end{aligned}\right\} \qquad (19)$$

L'application des formules (18) et (19) à une valeur numérique de $\Delta\tau$ fournit les coordonnées τ_2 et ξ_2 d'un point A_2 et la pente $\left(\frac{d\xi}{d\tau}\right)_2$ en ce point. La valeur de $\Delta\tau$ sera considérée comme satisfaisante si la variation de $f(\xi, \tau)$ entre A_1 et A_2 est assez faible pour justifier notre hypothèse. On continue ainsi de proche en proche.

L'application de cette méthode présente une légère difficulté dans le cas limite de l'équation (15'). En effet, au point de départ de la courbe, τ et ξ étant nuls, le terme $\frac{2\tau}{\xi}$ a une valeur indéterminée. Il est aisé de vérifier par substitution que, pour des valeurs de τ suffisamment faibles, l'équation (15') admet l'intégrale approchée $\xi = 2\sqrt{\frac{2}{3}}\tau^{\frac{3}{2}}$; le deuxième membre de l'équation (15') est donc infini pour $\tau = 0$; il est, par suite, impossible d'appliquer la méthode précédente dans le voisinage immédiat du point correspondant au filament. Mais l'intégrale approchée permet d'obtenir les coordonnées d'un point distinct du filament à partir duquel la méthode générale s'applique.

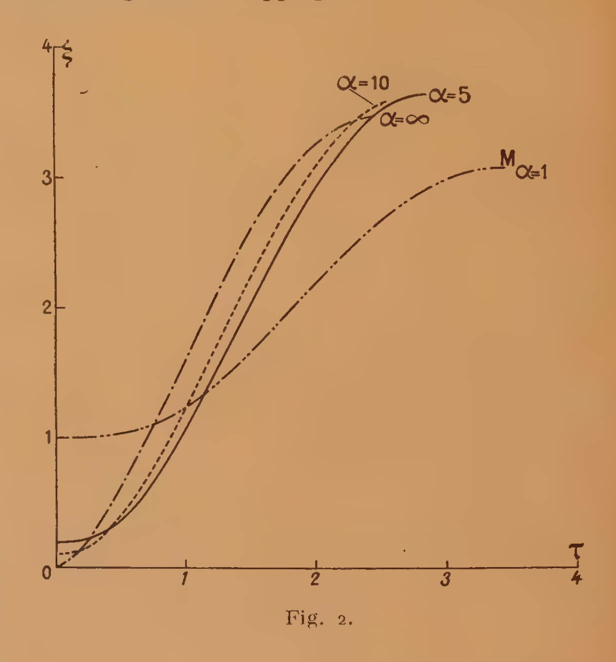


Fig. 2.

La figure 2 représente les courbes $\xi = \xi(\tau)$ pour diverses valeurs de α. Quand τ croît à partir de zéro, ξ est d'abord croissant, la dérivée $\frac{d\xi}{d\tau}$ initialement nulle commence par croître, atteint une valeur positive maximum correspondant à un point d'inflexion de la courbe $\xi(\tau)$, puis décroît jusqu'à la valeur zéro atteinte au point M. Au delà de M, $\frac{d\xi}{d\tau}$ devient négatif. Il est donc nécessaire de limiter la courbe $\xi(\tau)$ au point M afin de satisfaire notre hypothèse suivant laquelle à une valeur de ξ ne correspond qu'une seule valeur de $\vec{v}$, donc de $\frac{d\xi}{d\tau}$. Cette limitation signifie que, pour chaque valeur de α, c'est-à-dire pour un système de valeurs de a, I et H, l'anode doit être située à une distance réduite ξ inférieure ou égale à l'ordonnée ξ_M du point M correspondant.

Connaissant $\xi(\tau)$, on intègre l'équation (16) qui fournit θ par méthode graphique. On obtient ainsi, pour chaque valeur de α, la trajectoire réduite.

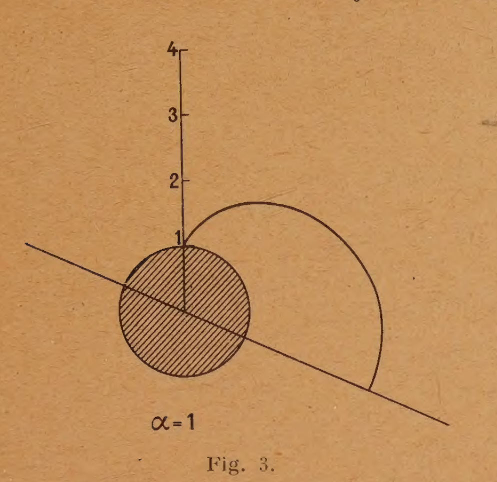


Fig. 3.

Les résultats obtenus sont représentés par les figures 3, 4, 5 et 6. La comparaison de ces courbes montre une grande analogie de formes pour toutes

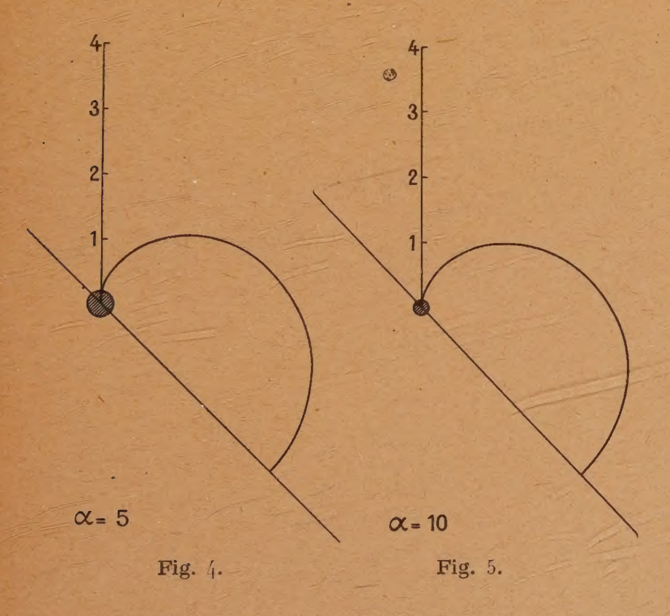


Fig. 4. Fig. 5.

les valeurs de α considérées, et une rapide convergence vers la courbe limite ($\alpha = \infty$, c'est-à-dire $a = 0$). Cette courbe limite peut être représentée sensiblement par la relation

$$\xi = 3{,}47 \sin^{\frac{3}{2}} 0{,}65\,\theta. \qquad (20)$$

Cette relation est analogue à celle qui fut antérieurement donnée par Hull. Cette dernière s'écrit, dans notre système de coordonnées réduites,

$$\xi = 3 \sin^{\frac{3}{2}} \frac{2}{3}\,\theta.$$

La connaissance, pour une valeur de α, de la loi $\xi(\tau)$ du mouvement radial, permet, grâce à

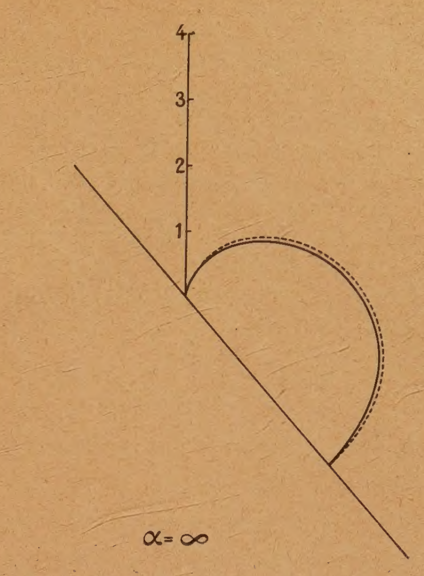


Fig. 6. — La courbe en traits discontinus est celle qu'on obtient par application de la formule approchée (20).

l'équation (17), d'obtenir la distribution U du potentiel réduit correspondant.

Les courbes obtenues sont portées figure 7.

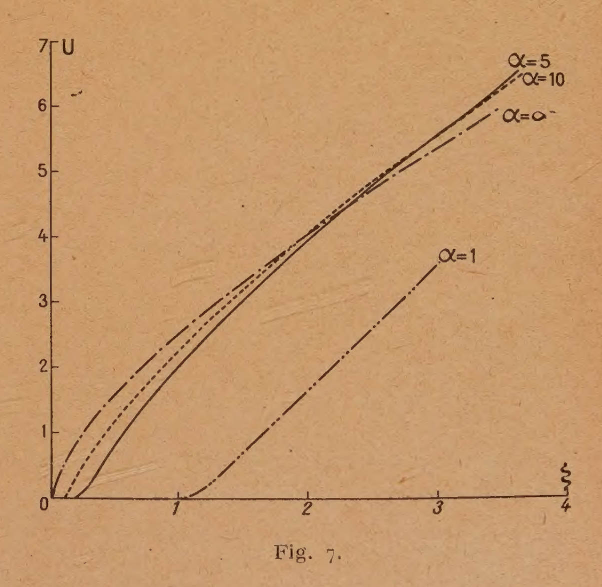


Fig. 7.

On observe, comme pour les trajectoires, que ces courbes tendent rapidement vers la courbe limite obtenue pour $\alpha = \infty$. Cette dernière, arrêtée au point d'abscisse $\xi = 3{,}47$, possède, en ce point, une ordonnée maximum $U = 6$.

5. Énoncé des résultats en coordonnées non réduites. — Les résultats précédents définissent

quantitativement le fonctionnement statique du magnétron dans tous les cas où l'hypothèse faite au paragraphe 2 se trouve satisfaite (par un point ne passe qu'une trajectoire électronique). Précisons, par un exemple, le parti que l'on peut tirer des courbes réduites :

Supposons donné un magnétron de rayon anodique b et de rayon a négligeable ($\alpha = \infty$). Donnons-nous également le champ magnétique H (d'où l'on déduit ω). Dans ces conditions, nous pouvons calculer le potentiel d'anode V_b correspondant à une valeur donnée I du courant et tracer les trajectoires des électrons dans ce régime. La formule (11) permet, en effet, de calculer

$$a\alpha = \sqrt{\frac{eI}{\varepsilon_0 m \omega^3}}. \qquad (21)$$

La formule (13) fournit alors la valeur ξ_b correspondant à l'anode

$$\xi_b = \frac{b}{\sqrt{\frac{eI}{\varepsilon_0 m \omega^3}}}. \qquad (22)$$

La courbe de la figure 7 permet de calculer le potentiel réduit U_b correspondant. On déduit alors, de la formule (14), le potentiel

$$V_b = \frac{m}{e} a^2 \alpha^2 \omega^2 U_b = \frac{I}{\varepsilon_0 \omega} U_b. \qquad (23)$$

Les trajectoires électroniques se déduisent de la trajectoire réduite $\alpha = \infty$ par similitude de rapport

$$\frac{r}{\xi} = \sqrt{\frac{eI}{\varepsilon_0 m \omega^3}}.$$

Leur équation approchée est donc

$$r = \sqrt{\frac{eI}{\varepsilon_0 m \omega^3}} \sin^{\frac{3}{2}} 0{,}65\theta.$$

L'arc réellement décrit sur ces trajectoires est naturellement défini par la condition $r \leq b$.

Si l'on se donne une valeur de I assez élevée ou un champ magnétique (ω) assez faible pour que

$$\xi_b = \frac{b}{\sqrt{\frac{eI}{\varepsilon_0 m \omega^3}}}$$

soit négligeable devant l'unité, le deuxième membre de l'équation réduite (15′) peut être confondu avec son premier terme $\frac{2\tau}{\xi}$. On se trouve pratiquement dans le cas étudié par Langmuir, de la diode cylindrique en l'absence de champ magnétique. Nous avons indiqué, dans ce cas, l'existence d'une solution

$$\xi = 2\sqrt{\frac{2}{3}}\,\tau^{\frac{3}{2}}.$$

On en déduit $U = 3\tau$.

D'où

$$U^{\frac{3}{2}} = \frac{9\xi}{2\sqrt{2}}.$$

En revenant aux variables non réduites, on obtient

$$I = \varepsilon_0 \frac{2\sqrt{2}}{9} \sqrt{\frac{e}{m}} \frac{V_b^{\frac{3}{2}}}{b} \qquad (24)$$

ou pratiquement

$$I_{\mathrm{A/cm}} = 14{,}68 \,.\, 10^{-6} \frac{V_{b\,\mathrm{V}}}{b_{\mathrm{cm}}}, \qquad (24')$$

ce qui est précisément la relation de Langmuir pour un filament infiniment fin. Dans ce cas, la portion utile de la trajectoire réduite, limitée à $\xi = \xi_b$, est extrêmement petite. Elle peut donc être assimilée à un segment de droite. La similitude de rapport $\sqrt{\frac{eI}{\varepsilon_0 m \omega^3}}$ transforme ce segment très petit en un segment de longueur b.

Si l'on choisit ensuite des valeurs de I décroissantes, ξ_b ne cesse d'augmenter; U_b augmente comme l'indique la courbe de la figure 7

$$U = f(\xi). \qquad (25)$$

Le sens de variation de V_b donné par la formule (23) n'est pas évident. Pour l'obtenir, on peut différentier les formules (22), (23) et (25).

On obtient ainsi

$$\frac{\mathrm{d}V}{\mathrm{d}I} = \frac{1}{\varepsilon_0 \omega} \left[f(\xi) - \frac{\xi}{2} f'(\xi) \right].$$

Or, pour des valeurs infiniment petites de ξ, $f(\xi)$ a pour expression approchée

$$f(\xi) = \left(\frac{9}{2\sqrt{2}} \right)^{\frac{2}{3}} \xi^{\frac{2}{3}}.$$

D'où

$$\frac{\mathrm{d}V}{\mathrm{d}I} = \frac{1}{\varepsilon_0 \omega} \left[\left(\frac{9}{2\sqrt{2}} \right)^{\frac{2}{3}} - \frac{1}{3} \left(\frac{9}{2\sqrt{2}} \right)^{\frac{2}{3}} \right] \xi^{\frac{2}{3}},$$

$\frac{\mathrm{d}V}{\mathrm{d}I}$ est donc positif. On peut vérifier sur le tracé de la figure 7 que cette condition ne cesse pas d'être remplie, quel que soit ξ. Lorsque I diminue, V augmente donc aussi. Enfin, si ξ_b atteint la valeur 3,47, c'est-à-dire pour

$$I_0 = \varepsilon_0 \frac{m}{e} \omega^3 \left(\frac{b}{3{,}47} \right)^2, \qquad (28)$$

le potentiel réduit a pour valeur 6. D'où

$$V_b = \frac{6 I_0}{\varepsilon_0 \omega}. \qquad (29)$$

La portion utile de la trajectoire est alors la totalité de l'arc tracé sur la figure 6, c'est-à-dire que les électrons arrivent sur l'anode avec une trajectoire tangente à cette électrode. Sur l'anode,

$\left(\frac{d\xi}{d\tau}\right)$ est donc nul. La condition de coupure (10) est satisfaite; il est aisé de le vérifier sur les équations (28) et (29). En éliminant I_0, on obtient, en effet,

$$V_b = \frac{1}{2}\frac{m}{e}\omega^2 b^2 = V_c. \quad (30)$$

Si l'on donne à V_b une valeur inférieure à la valeur précédente, nous avons vu que les électrons ne peuvent plus atteindre l'anode. Le courant capté par celle-ci est donc nul.

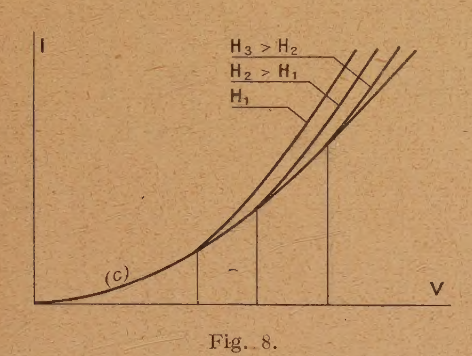


Fig. 8.

En résumé, le réseau des caractéristiques courant anodique-tension d'un magnétron donné a l'aspect représenté figure 8.

La courbe de coupure c, lieu géométrique des points de coupure quand H varie, est définie par les équations paramétriques (28) et (29) ou (28) et (30).

En éliminant ω entre ces équations, on obtient

$$I = \frac{\varepsilon_0}{6}\sqrt{\frac{2e}{m}}\frac{V^{\frac{3}{2}}}{r} \quad (31)$$

ou pratiquement

$$I_{\text{A/cm}} = 11.10^{-6}\frac{V_{\text{volts}}^{\frac{3}{2}}}{r_{\text{cm}}}. \quad (31')$$

Cette formule est d'un type analogue à la formule de Langmuir.

Pour terminer, on peut se demander quelle est la trajectoire des électrons quand le potentiel d'anode est inférieur au potentiel de coupure. C'est là une question qui a fait déjà l'objet de débats entre divers auteurs [3].

L'examen des équations du paragraphe 2 nous permet de prévoir au moins deux types de trajectoires possibles :

1° Si l'on admet que les électrons retombent sur la cathode, il résulte des équations (2) et (4) que le mouvement de retour vers la cathode est symétrique du mouvement de départ vers l'anode.

Les trajectoires s'obtiennent en complétant les courbes tracées par symétrie autour du rayon correspondant au maximum de ξ. En un point passent alors deux sortes d'électrons : les uns s'éloignent du filament et les autres s'en rapprochent. Il leur correspond respectivement les courants $+I$ et $-I$. Pour une valeur donnée de I, la densité de charge d'espace se trouve doublée par rapport au cas précédemment étudié.

La relation (6) s'écrit donc

$$I = \pi r \rho \frac{dr}{dt},$$

$\left(\frac{dr}{dt}\right.$ étant relatif aux électrons qui s'éloignent du filament$\left.\right)$ au lieu de

$$I = 2\pi r \rho \frac{dr}{dt}$$

et la relation (7) devient

$$\varepsilon_0 r E = 4It.$$

En résumé, il suffit de remplacer dans les équations I par $2I$ pour avoir un résultat correct.

2° Un autre type de trajectoires possibles a été signalé par divers auteurs [4]. Il s'agit de trajectoires circulaires ayant pour axe le filament. On vérifie aisément qu'un tel régime est également compatible avec les trois équations fondamentales du problème. Dans ce cas, il n'y a pas seulement un courant anodique nul, mais encore un courant nul émis par le filament, le nuage électronique tournant autour de celui-ci s'opposant à l'extraction de nouveaux électrons.

Lorsque, à champ magnétique constant, on fait décroître progressivement la tension anodique jusqu'à la valeur critique V_c, le régime qui s'établit évolue de façon continue, ainsi que nous l'avons décrit. Mais si l'on franchit la valeur critique, il n'est plus possible d'invoquer la continuité pour savoir quel est, parmi les deux régimes que nous venons de mentionner, celui qui s'établit.

De toutes façons, le passage par la valeur critique correspond à un phénomène discontinu au cours duquel le courant anodique passe d'une valeur finie I_0 à zéro et la charge d'espace se trouve profondément modifiée.

Comme l'a fait remarquer Mac Namara [5], il semble que seul un examen expérimental permette de prendre position. Une expérience relatée par cet auteur se trouve en faveur du premier des deux régimes cités : retour des électrons sur la cathode.

Remarque. — Nos équations de départ sont équivalentes à celles utilisées par L. Brillouin [6] dans des articles récents sur le magnétron. Cependant nos résultats diffèrent des siens. Ces différences proviennent d'approximations effectuées par cet auteur sur les équations différentielles.

La solution asymptotique qu'il indique pour la région éloignée du filament $[r \gg a\alpha]$ semble perdre

son intérêt si l'on prouve l'existence d'au moins un maximum pour la courbe $\xi = \xi(\tau)$.

Durées de transit. — Dans cette hypothèse, la durée τ d'une révolution électronique peut être déduite de la figure 2. L'abscisse maximum atteinte sur la courbe $\alpha = \infty$, est égale à 2,43, d'où

$$\tau = 2.2{,}43 = 4{,}86$$

ou

$$t = \frac{4{,}86}{\omega} = \frac{9{,}72}{\mu_0 \frac{e}{m} H}. \qquad (32)$$

Cette formule peut être comparée avec celle qu'on obtient en négligeant la charge d'espace. Si le filament est infiniment mince, la chute de potentiel V_b est localisée dans le voisinage immédiat de celui-ci. Les trajectoires électroniques sont alors celles d'électrons lancés avec une vitesse initiale $\sqrt{\frac{2eV}{m}}$ dans un champ magnétique H perdiculaire à celle-ci.

Ce sont des cercles. Le parcours de l'un d'eux correspond à une variation de θ égale à π. La durée de transit est donc

$$t = \frac{\pi}{\omega} = \frac{6{,}28}{\mu_0 \frac{e}{m} H}. \qquad (33)$$

La comparaison des formules (32) et (33) montre qu'un des effets de la charge d'espace est une majoration de plus de 50 pour 100 de cette durée de transit.

APPENDICE.

Tableau de valeurs numériques pour $\alpha = \infty$.

τ.	θ (degrés).	ξ.	U.
0	0	0	0
0,1	5°40′	0,0552	0,40
0,2	11°30′	0,158	0,73
0,4	22°50′	0,446	1,51
0,6	34°20′	0,809	2,22
0,8	45°50′	1,21	2,90
1	57	1,63	3,54
1,2	69	2,04	4,13
1,4	80	2,43	4,61
1,6	92	2,78	5,14
1,8	103	3,06	5,50
2	115	3,28	5,70
2,2	126	3,42	5,90
2,3	132	3,45	5,95
2,4	137	3,47	6,0
2,43	139	3,47	6,0

Manuscrit reçu le 5 avril 1945.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] HULL, *Physical Review*, 1921, **18**, p. 31.
[2] LANGMUIR, *Physical Review*, 1913, **2**, p. 455. Cet article a été complété ultérieurement : LANGMUIR et BLODGETT, *Physical Review*, 1923, p. 347.
[3] HULL, The paths of electrons in the magnetrons, *Phys. Rev.*, 1924, **23**, p. 112; MEGAW, An investigation of the magnetron short wave oscillator, *I. E. E. Journal* 1933, **72**, p. 326.
[4] HULL et MEGAW, *Loc. cit.*; BLEWETT et RAMO, *Physical Review*, 1940, **57**, p. 635; Léon BRILLOUIN, *Physical Review*, 1941, **60**, p. 385 et *Proceedings of the I. R. E.*, 1944, p. 216.
[5] MAC NAMARA, A note on magnetron theory, *P. I. R. E.*, 1934, **22**, p. 1037.
[6] Léon BRILLOUIN, *Loc. cit.*

ERRATUM.

La figure 7 de l'article de M. J. ABELÉ, publié dans le numéro d'avril, est incomplète. La courbe tracée en trait continu ne représente que la moitié de la variation de la fonction $\psi_1(z)$. Elle doit être complétée par une seconde partie, symétrique de la première par rapport à l'origine des coordonnées et formant avec elle un cycle.

Le commentaire de la figure doit être modifié comme il suit :

« La seconde (courbe) peut être considérée comme un dédoublement de la première, les régions médianes restant voisines et sensiblement parallèles tandis que les boucles terminales sont plus dilatées. »

Le Gérant : MAURICE BLONDIN. 121077 IMP. GAUTHIER-VILLARS, 55, quai des Grands-Augustins, Paris. — 1945.